N° D'ORDRE : 744

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

HANS-OLAF PFANNKUCH

Première thèse

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES DÉPLACEMENTS DE FLUIDES MISCIBLES DANS UN MILIEU POREUX

Deuxième thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

soutenues le 4 mai 1962, devant la commission d'examen

MM. P. LAFFITTE *Président.*
E. A. BRUN, R. COMOLET *Examinateurs.*

PUBLIÉ PAR LA REVUE DE L'INSTITUT FRANÇAIS DU PÉTROLE
ET ANNALES DES COMBUSTIBLES LIQUIDES
1963, vol. XVIII, n° 2
PARIS

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41549205_0004

N° D'ORDRE : 744

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

HANS-OLAF PFANNKUCH

Première thèse

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES DÉPLACEMENTS DE FLUIDES MISCIBLES DANS UN MILIEU POREUX

Deuxième thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

soutenues le 4 mai 1962, devant la commission d'examen

MM. P. LAFFITTE *Président.*
E. A. BRUN, R. COMOLET *Examinateurs.*

R. UNIV. BIBLIOTHEEK LEIDEN

PUBLIÉ PAR LA REVUE DE L'INSTITUT FRANÇAIS DU PÉTROLE
ET ANNALES DES COMBUSTIBLES LIQUIDES
1963, vol. XVIII, n° 2

PARIS

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

PROFESSEURS

Doyen..... ... M. ZAMANSKY.

JULIA G..... T Analyse sup. et Algèbre sup.
DE BROGLIE..... T Théories physiques.
PRENANT..... T Anat. et Histol. comp.
GRASSÉ..... T Évolution des êtres organisés.
PRÉVOST..... T Chimie organique.
CHAUDRON..... T Chimie appliquée.
WYART..... T Minéralogie et Cristallogr.
TEISSIER..... T Zoologie.
MANGENOT..... T Biologie végétale (Orsay).
AUGER P..... T Physique quantique et Relativité.
MONNIER..... T Physiologie générale.
PIVETEAU..... T Paléontologie.
ROCARD..... T Physique (E. N. S.).
CARTAN..... T Mathématiques (E. N. S.).
LAFFITTE..... T Chimie générale.
FAVARD..... T Géométrie supérieure.
COULOMB..... T Physique du Globe.
M^lle^ COUSIN..... T Biologie animale (S. P. C. N.).
CHRÉTIEN..... T Chimie minérale.
DRACH..... T Zoologie.
KASTLER..... T Physique (E. N. S.).
EPHRUSSI..... T Génétique.
RIVIÈRE..... T Géologie (S. P. C. N.) et Sédim.
GAUTHERET..... T Biologie végétale (P. C. B.).
LUCAS R..... T Recherches physiques.
THOMAS A..... T Biologie cellulaire.
ARNULF..... T Optique appliquée.
MORAND M..... T Physique Enseignement.
SOLEILLET..... T Physique (P. C. B.).
FORTIER..... T Mécanique expérimentale des fluides.
DANION..... T Astronomie.
PETIT..... T Biologie maritime.
QUENEY..... T Météorologie et Dynamique atmosphérique.
GALLIEN..... T Embryologie.
EICHHORN..... T Botanique.
DE CUGNAC..... T Biol. végétale (S. P. C. N.).
M^lle^ CAUCHOIS... T Chimie physique.
THELLIER..... T Physique du Globe.
L'HÉRITIER..... T Biologie générale (Orsay).
GRIVET..... T Radio-électricité (Orsay).
PONCIN..... T Mécanique générale.
DUBREIL..... T Arithmétique et théorie des nombres.
QUELET..... T Chimie organique.
CAGNIARD..... T Géophysique appliquée.
CHAMPETIER..... T Chimie macromoléculaire.
CUVILLIER..... T Micropaléontologie.
JUNG..... T Pétrographie.
TRILLAT..... T Microscopie et Diffraction électronique.
WIEMANN..... T Chimie organ. et structur.
JACQUINOT..... T Spectroscopie et Physique céleste (Orsay).
VASSY..... T Physique de l'atmosphère.
DESTOUCHES.... T Théories physiques.
AMIEL..... T Chimie générale.
HOCART..... T Minéralogie et Cristallogr.
MATHIEU J.-P.... T Physique (Optique).
COUTEAUX..... T Biologie animale (P. C. B.).
MAY..... T Zoologie (Orsay).
CHOQUET..... T Théorie des fonct. et Topol.
FELDMANN..... T Biologie végétale marine.
GUINIER..... T Phys. des solides (Orsay).
JOST..... T Physiologie comparée.
FORTET..... T Calcul des probabilités et Physique mathématique.
SCHWARTZ..... T Calc. différentiel et intégral.
CHOUARD..... T Physiologie végétale.
MALAVARD..... T Aviation (Techn. aéronaut.).
BRELOT..... T Calc. différentiel et intégral.
NORMANT..... T Synthèse organique génér.
BÉNARD..... T Chimie minérale.
BUVAT..... T Botanique (E. N. S.).
DUGUÉ..... T Statistiques mathématiques.
SOULAIRAC..... T Psychophysiologie.
ULRICH..... T Physiologie végétale.
MARÉCHAL..... T Optique théorique et appliquée.
KIRRMANN..... T Théories chimiques.
CHADEFAUD..... T Botanique.
M^lle^ LE BRETON . T Physiologie de la nutrition.
SALEM..... T Mathématiques générales.
LELONG..... T Application de l'analyse à la géométrie.
DEVILLERS..... T Anatomie et Histologie comparées.
EHRESMANN..... T Topologie algébrique.
FRANÇON..... T Physique (S. P. C. N.).
GLANGEAUD..... T Géog. physique et Géologie dynamique.
GODEMENT..... T Mathématiques (M. P. C.).
PISOT..... T Tech. mathém. de la phys.
ROCH..... T Géologie.
SCHATZMAN..... T Astrophysique.
TERMIER..... T Paléontologie stratigr.
ZAMANSKY..... T Mathématiques générales.
LENNUIER..... T Physique (M. G. P.).
RIZET..... T Génétique (Orsay).
ROUTHIER..... T Géologie appliquée.
M^me^ TONNELAT.. T Physique théorique.
DIXMIER..... T Mathématiques (M. P. C.).
SOUCHAY..... T Chimie générale.
AIGRAIN..... T Electrotechnique générale.
BRUSSET..... T Chimie systématique.
LÉVY M..... T Physique théorique des hautes énergies (Orsay).
M^me^ CHAIX..... T Chimie biologique.
M^me^ HUREL-PY... Biologie végétale (P. C. B.).
PIAUX..... T Chimie (M. P. C.).
BRUN..... T Méc. théorique des fluides.
LEDERER..... T Chimie biologique.
M^me^ DUBREIL..... T Mathém. (Agrégation).
M^me^ LELONG..... T Mathématiques (E. N. S.).
BELLAIR..... T Géologie (S. P. C. N.).
COTTE..... T Physique électricité.
DUBOIS I.-E..... T Chimie organique.
LAMOTTE..... T Zoologie (E. N. S.).
MICHEL A..... T Chimie minérale (Orsay).
OLMER..... T Energétique générale.
ROUAULT..... T Electricité (Orsay).
GAUTHIER..... T Mécanique appliquée.
BARCHEWITZ.... T Chimie physique.
BROSSEL..... T Physique atomique.
BUSER..... T Physiologie comparée.
CAMUS..... T Physiol. vég. (B. M. P. V.).
CASTAING..... T Physique (Orsay).
CURIEN..... T Minéralogie et Cristallogr.
MOYSE..... T Physiologie vég. (Orsay).
NOIROT..... T Evolution des êtres org.
PANNETIER..... T Chimie générale (Orsay).
POSSOMPÈS..... T Zoologie.
PULLMANN..... T Chimie théorique.
TEILLAC..... T Physique nucléaire et Radioactivité.
TONNELAT..... T Biologie physico-chimique.
VILLE..... T Econométrie.
VILLEMART..... T Chimie (P. C. B.).
DODÉ..... T Chimie (Orsay).
FREYMANN..... T Recherches physiques.
GUINOCHET..... T Biologie végétale (S. P. C. N.) (Orsay).
ROLLET..... T Chimie (P. C. B.).
M^lle^ JOSIEN..... T Chimie (S. P. C. N.).
CHEVALLEY..... T Géométrie algébrique et Théorie des groupes.
ARNOULT..... T Electronique (Orsay).
CHAPELLE..... T Physique (Orsay).
DELANGE..... T Mathématiques (Orsay).
DENY..... T Mathém. génér. (Orsay).
GERMAIN..... T Méc. théorique des fluides.
LUCAS G..... T Géologie.
ALLARD..... T Chimie physique.
BERTHELOT..... T Phys. fondam. des hautes énergies (Orsay).
BRICARD..... T Météorologie et physique de l'atmosphère.
M^me^ ALBE-FESSARD..... T Psychophysiologie.
FRIEDEL..... T Phys. des solides (Orsay).
JULIA M..... Etudes des moléculaires naturelles complexes.
LENDER..... T Biologie animale (S. P. C N.) (Orsay).
MAGAT..... Physico-chimie des radio-éléments.
M^lle^ QUINTIN.... T Electrochimie.
MONOD..... T Chimie du métabolisme.
BENOIT..... T Physiologie anim. (Orsay).
DE POSSEL..... T Analyse numérique.
CHARLOT..... T Chimie analytique.
HAISSINSKY..... T Radiochimie.
LEMÉE..... T Phys. végétale (B. M. P. V.) (Orsay).
GUÉRIN..... T Chimie (M. P. C.) (Orsay).
CHATELET M..... T Chimie (P. C. B.).
JEAN..... T Physique nucléaire (Orsay).
MATTLER..... T Physique (S. P. C. N.).
MICHEL L..... Physique théor. des hautes énergies (Orsay).
BERGERARD..... T Zoologie (Orsay).
BERTEIN..... T Electronique (Orsay).
BOUISSIÈRES..... Chimie des radio-éléments (Orsay).
M^me^ COUTURE... T Thermodynamique et Mécanique physique.
ELLENBERGER.... T Géologie appl. sur le terr.
FRANC..... Biologie animale (P. C. B.).
SCHNELL..... Botanique tropicale (Orsay).
STOLKOWSKI.... Physiologie générale.
ACHER..... Chimie biol. (Orsay).
BAUDOIN..... Biologie anim. (P. C. B.).
BEAUMONT..... Biologie anim. (S. P. C. N.).
BLAMONT..... T Géophysique ionosphère.
BOURREAU..... Botanique.
CURIE D..... Physique (M. G. P.).
DURAND-DELGA. Géologie.
FRÉON..... T Chimie organique (Orsay).
HELLER..... T Physiologie végétale.
TORTRAT..... T Calcul des probalitités.
CAILLEUX..... Géologie (S. P. C. N.).
MAGNAN..... T Physique (S. P. C. N.).
DAUDEL..... T Mécanique ondulatoire appliquée à la chimie théor. et à la physique nucléaire.
M^lle^ FOURCROY. Biologie végét. (S. P. C. N.).
M^me^ CHOQUET-BRUHAT..... T Mécanique analytique et Mécanique céleste.
M^lle^ VEIL..... Physiologie générale.
LWOFF..... T Microbiologie.
SIESTRUNCK..... T Mécanique physique et expérimentale.
LACOMBE..... T Métallur. des métaux nucl.
BROCHARD..... T Physique (P. C. B.) (Orsay).
CABANNES..... T Mécanique générale.
LESIEUR..... T Mathém. (M. P. C.) (Orsay).
MAZET..... T Mécanique générale (Orsay).
CAIRE..... Geographie phys. et Géol. dynamique.
COMOLET..... T Mécanique des fluides.
CORABŒUF..... Physiologie animale.
DELLOUE..... Physique de l'exosphère.
GORENFLOT..... Botanique II (Orsay).
HOUILLON..... Biologie animale (P. C. B.).
JULLIEN J..... Chimie (P. C. B.).
MALGRANGE. ... T Tech. math. de la phys.
OLIVIER..... Antropologie.
NOZERAN ..... T Botanique II (Orsay).
BLANC-LAPIERRE Physique (E. N. S.) (Orsay).
CHEVAUGEON... T Botanique (Orsay).
KAHANE..... T Mathématiques (Orsay).
SAMUEL..... T Mathém. E. N. S. féminines.
KOURGANOFF... T Astronomie (Orsay).
THIRY..... T Mécanique céleste.

Secrétaire général..... R. POULLAIN.

Le travail de M. H. O. PFANNKUCH concerne la diffusion à l'interface de deux fluides miscibles, se déplaçant, en écoulement unidimensionnel, dans un milieu poreux. A cause de ce déplacement, le coefficient de diffusion apparent est nettement plus élevé que le coefficient de diffusion mesuré dans des expériences statiques.

Chacun des travaux antérieurs n'avait couvert qu'un domaine relativement réduit de conditions. M. PFANNKUCH a fait varier dans de plus larges proportions la vitesse d'écoulement et la granulométrie du milieu poreux, ce qui lui a permis de mettre en évidence quatre régimes de mélange, dont l'interprétation peut être donnée par différentes théories.

Dans un exposé bibliographique complet, M. PFANNKUCH a pu ensuite rassembler tous les résultats obtenus par d'autres expérimentateurs et les interpréter convenablement ; on peut ainsi considérer que ce travail constitue une monographie fort importante du sujet.

EDMOND A. BRUN
Professeur à la Sorbonne

En présentant ce travail, nous nous permettons d'adresser nos très respectueux remerciements à M. le professeur Edmond A. Brun, qui a orienté et suivi cette étude.

Nous remercions très sincèrement M. le professeur P. Laffitte, qui a bien voulu présider notre Jury.

Nous adressons nos remerciements à M. le professeur R. Comolet, qui a bien voulu accepter d'être membre du Jury.

Nous exprimons toute notre gratitude à M. R. Navarre, président directeur général de l'*Institut Français du Pétrole*, qui a permis la poursuite de ce travail par les moyens mis à notre disposition.

Nous remercions tout particulièrement M. Le Fur qui, à l'*Institut Français du Pétrole* n'a cessé de nous guider et de nous conseiller dans cette recherche.

Nous exprimons notre profonde reconnaissance à M. Pottier, chef du Département « Production » de l'*Institut Français du Pétrole*, qui a bien voulu s'interresser à notre travail. Nous remercions également les ingénieurs et le personnel de la Division « Forage, Production, Gisements », qui nous ont aidé et assisté dans notre tâche.

Enfin, nous tenons à adresser nos remerciements au Gouvernement Français qui a bien voulu nous accorder une bourse d'études.

SOMMAIRE

NOTATIONS 1

1. INTRODUCTION 1

1.1. Définition et aspects physiques du phénomène 1
1.2. Intérêt pratique 2
1.3. Principes d'un déplacement miscible 2

2. CONSIDÉRATIONS THÉORIQUES ET REVUE BIBLIOGRAPHIQUE 4

2.1. Mécanisme d'un déplacement polyphasique 4
2.2. Analyse du problème 4

2.2.1. Mécanisme de la dispersion du front de déplacement.
2.2.2. Technique expérimentale.
2.2.3. Paramètres susceptibles d'influer sur la dispersion.

2.3. Revue de la bibliographie générale 6

2.3.1. Milieux poreux.
2.3.2. Fluides de déplacement.
2.3.3. Conditions de déplacement.

2.4. Les théories sur le déplacement de fluides miscibles dans un milieu poreux 7

2.4.1. Déplacement dans un tube capillaire.
2.4.2. Application des résultats obtenus dans un tube capillaire à un milieu poreux.
2.4.3. Théories statistiques.
2.4.4. Théorie du mélange à l'échelle d'un pore.

3. TRAVAUX DE LABORATOIRE 20

3.1. Le montage général 21
3.2. Fluides 28
3.3. Mode opératoire 30
3.4. Résultats 32

4. RÉSULTATS ET DISCUSSION 38

4.1. Mise en évidence de différents régimes de mélange 38
4.2. Considération en détail de chaque régime 40

4.2.1. Régime de la diffusion moléculaire pure ou régime I.
4.2.2. Régime de superposition ou régime II.
4.2.3. Régime où la diffusion dynamique est prédominante ou régime III.
4.2.4. Régime de la diffusion dynamique pure ou régime IV (en restant dans le domaine de validité de la loi de Darcy).
4.2.5. Régime de la diffusion dynamique pure ou régime V (effets d'inertie non négligeables).

4.3. Caractérisation du milieu poreux 50

4.3.1. Méthodes statiques.
4.3.2. Méthodes dynamiques.

5. CONCLUSION 52

BIBLIOGRAPHIE 53

NOTATIONS

C : concentration (valence • g/l) ;
D : coefficient de la diffusion moléculaire ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
D_i : diamètre intérieur du tube (cm) ;
F : facteur de formation ;
K : coefficient de la diffusion apparente ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
K_c : coefficient de la diffusion dynamique dans un capillaire ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
K_L : coefficient de la diffusion dynamique dans la direction générale de l'écoulement ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
K_m : coefficient de la diffusion moléculaire dans un milieu poreux (pris dans le fluide) ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
K_f : coefficient de la diffusion moléculaire dans un milieu poreux (pris dans l'espace ($cm^2 \cdot s^{-1}$) ;
L : longueur totale d'un milieu poreux (cm) ;
ΔL : longueur de la zone de transition à l'instant t (cm) ;
S : section du milieu poreux (cm^2) ;
T : temps total d'un déplacement (s) ;
V : volume (cm^3) ;
$V_{0.16}^{0.50}$: volume contenu entre les points d'échantillonnage $\frac{C}{C_0} = 0{,}5$ et $\frac{C}{C_0} = 0{,}16$ de l'effluent (cm^3) ;
V_i : volume injecté (cm^3) ;
V_p : volume des pores d'un milieu poreux (cm^3) ;
Pe_{dyn} ou $Pe_K = \frac{d_p \cdot u}{K}$: nombre de Péclet de diffusion dynamique ;
Pe_{moi} ou $Pe_D = \frac{d_p \cdot u}{D}$: nombre de Péclet de diffusion moléculaire ;
$Re = \frac{d_p \cdot u}{\eta}$: nombre de Reynolds ;
a : rayon d'un capillaire (cm) ;
d_p : diamètre moyen des particules constituant le milieu poreux non consolidé (cm) ;
f : porosité ;
k : perméabilité (darcys) ;
l : longueur d'un canal élémentaire (cm) ;
n : nombre d'interconnexions ou nombre de pores dans un milieu poreux (cm) ;
p : pression (atm.) ;
q : débit volumétrique ($cm^3 \cdot s^{-1}$) ;
r : distance à l'axe de révolution d'un capillaire (cm) ;
t : temps (s) ;
u : vitesse moyenne dans les pores ;
v : vitesse locale ;
x : abscisse dans la direction générale de l'écoulement ;
α : coefficient de dispersivité d'un milieu poreux régime interférentiel ;
β : coefficient de dispersivité d'un milieu poreux régime de la diffusion dynamique pure ;
μ : viscosité (Po) ;
$\eta = \mu/\varrho$: viscosité dynamique (St) ;
ϱ : masse volumique (g/cm^3) ;
δl : longueur de la zone de transition déterminée à l'aide de l'échantillonnage à la sortie ;
$\sigma = \frac{V_{0.16}^{0.50}}{V_p}$: épaisseur réduite de la zone de transition entre les échantillons de concentration $\frac{C}{C_0} = 0{,}5$ et $\frac{C}{C_0} = 0{,}16$ de l'effluent ;
σ_o, σ_w : conductivité du fluide.

1. INTRODUCTION

1.1. Définition et aspects physiques du phénomène.

Lors d'un écoulement lent de deux fluides miscibles dans un milieu poreux, on rencontre des conditions analogues à celles d'un écoulement monophasique. La loi de Darcy est donc valable dans sa forme originale. Cet écoulement est caractérisé par l'absence de phénomènes capillaires et de tensions interfaciales entre les deux liquides. Grâce à ce dernier fait, la désaturation totale d'un massif poreux du fluide originellement en place par un fluide miscible est possible.

Appliqué en pratique à l'exploitation d'un gisement de pétrole, par exemple, une méthode de récupération secondaire, basée sur le principe d'un déplacement de fluides miscibles, permettrait une désaturation plus complète de la roche magasin. L'avantage sur un déplacement polyphasique comme le déplacement de l'huile par de l'eau sera donc d'avoir une plus grande efficacité de balayage.

1.2. Intérêt pratique.

Avant de traiter la théorie et les aspects appartenant à la mécanique des fluides du phénomène, il faut faire quelques remarques sur l'intérêt pratique que peut avoir l'étude du déplacement de ces fluides miscibles. En principe, il y a trois secteurs de l'industrie qui y sont particulièrement intéressés et d'où proviennent aussi les contributions théoriques ou expérimentales sur lesquelles se porte la revue bibliographique qui suit. Les industries en question sont les suivantes :

Génie chimique.

Le cas d'écoulement de fluides à travers les lits fixes composés de particules solides se présente dans l'industrie chimique pour un très grand nombre d'opérations de transfert de masse. Pour obtenir l'efficacité maximale d'un réacteur continu, les conditions de déplacement des fluides ou des constituants doivent s'approcher de celles de « l'écoulement frontal parfait » (*piston-flow*). Le mélange longitudinal de fluides miscibles, entraînant une variation de concentration suivant la direction axiale, peut diminuer considérablement l'efficacité de l'opération. Les considérations relatives au déplacement des fluides miscibles dans un milieu poreux s'appliquent donc aux opérations telles que l'échange d'ions, la chromatographie, l'extraction par solvant, la régénération des catalyseurs, etc., si elles ont lieu dans la charge constituant un massif poreux (1). Les conditions d'écoulement relatives aux opérations indiquées ci-dessus sont caractérisées par des vitesses d'écoulement assez élevées par rapport à celles rencontrées dans les deux applications suivantes.

Hydrologie.

Les études de la contamination des réservoirs d'eau douce par l'eau de mer ou des eaux industrielles et les études des courants des eaux souterraines par l'injection des traceurs sont directement liées au comportement de deux fluides miscibles lors de leur déplacement.

Industrie du pétrole.

La technique de récupération secondaire basée sur le principe d'un déplacement de fluides miscibles est pleine de promesses. Même une faible amélioration du pourcentage de la récupération de l'huile en place augmenterait les réserves mondiales en hydrocarbures d'une façon très importante. Pour donner un ordre de grandeur de l'importance de ces procédés, mentionnons que depuis 1951 une quarantaine de projets ont été mis en application, soit sous forme d'essais pilotes, soit à l'échelle du gisement aux États-Unis, au Canada, au Pérou et au Venezuela.

1.3. Principes d'un déplacement miscible.

Économiquement, il serait impensable de refouler l'huile de gisement par un solvant (fluide miscible à l'huile) plus cher que l'huile même. Néanmoins, on a trouvé une solution moins onéreuse. Un tampon de solvant, comprenant seulement une fraction relativement faible de la quantité d'huile en place, est injecté dans le gisement. Un troisième fluide, moins cher encore, mais à son tour miscible

(1) Toutefois, il faut préciser que dans les réacteurs continus, il ne s'agit pas toujours de deux fluides ou liquides qui réagissent entre eux. Il y a aussi le cas d'un seul fluide qui réagit avec les constituants de la charge ou qui est transformé par catalyse. Dans ce cas, le fluide non transformé et le fluide résultant de la transformation peuvent être considérés comme deux fluides miscibles pour le calcul de l'efficacité de l'opération.

au solvant est injecté derrière le bouchon de solvant comme agent moteur. Il fait avancer le tampon et refouler le pétrole brut (fig. 1).

En pratique, on a pensé à forcer un tampon d'alcool par les puits d'injection soit par déplacement unidimensionnel en direction verticale, soit par déplacement horizontal radial, formant un front cylindrique s'étendant autour du puits d'injection. L'alcool sera refoulé et déplacé par une injection d'eau. La disposition des puits d'injection et de production sera faite selon les mêmes principes que ceux du « water-drive » ou du « gas-drive » conventionnel.

Le phénomène prépondérant qu'on peut observer au cours d'un tel déplacement est la formation de zones de mélange ou zones de transition au contact des différents fluides (fig. 1). Ces zones ont tendance à s'accroître lors d'un déplacement. Si l'extension de ces zones de mélange atteint le point où elles se rejoignent, le tampon est détruit et l'efficacité du déplacement miscible devient nul, parce que le fluide refoulant le bouchon et placé en contact avec l'huile du gisement, n'est pas miscible à l'huile. Le problème pratique est donc de déterminer le volume minimal du tampon pour lequel les conditions de miscibilité ne disparaissent pas au cours d'un déplacement.

En résumé, les études à entreprendre doivent se concentrer sur les lois qui décrivent la formation et le comportement de la zone de transition lors d'un déplacement des fluides miscibles. Les deux principes essentiels pour réaliser un tel déplacement sont les suivants :

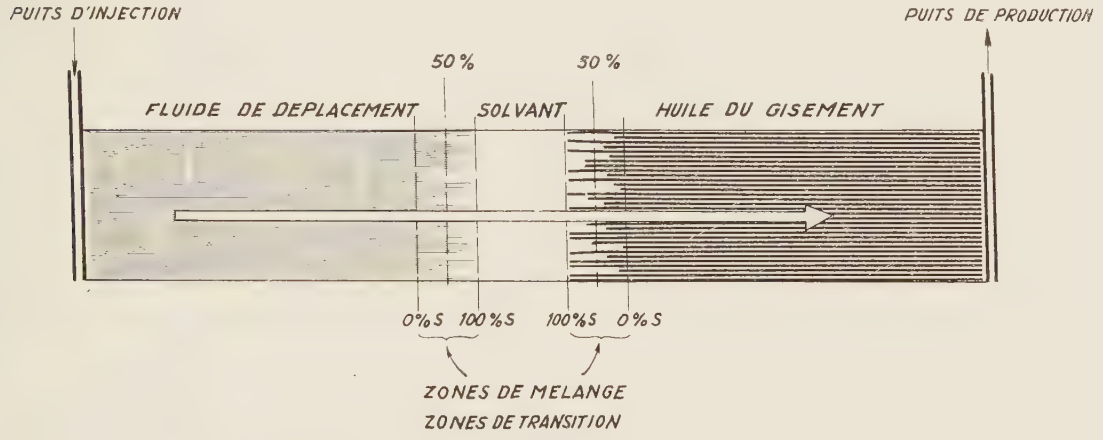


FIG. 1.

Cas d'une miscibilité déjà existante.

Un tampon de solvant pour lequel les conditions de miscibilité avec l'huile existent a prior. est injecté dans le gisement comme indiqué ci-dessus.

Exemples : tampon d'alcool, poussé par l'eau ; tampon de propane liquide, poussé par un gaz sec.

Dans ce cas, les avantages de ce procédé sont l'utilisation de pressions basses et une plus grande facilité d'application qui en résulte. L'inconvénient, par contre, est qu'une fois la miscibilité perdue par la dispersion du tampon de solvant, il n'y a pas moyen de la reconstituer contrairement à ce qui se passe dans l'autre cas, comme on va le voir.

Cas d'une miscibilité à créer.

Le fluide du tampon est amené à être miscible à l'huile dans le réservoir même, où les conditions pour un déplacement miscible sont créées sur place, sous l'effet de très hautes pressions.

Exemples : *High-pressure gas-drive* (injection de gaz à haute pression) : enrichissement du gaz en hydrocarbures de gisement au cours de son parcours et formation du tampon de déplacement quand la quantité et la composition des hydrocarbures sont suffisantes.

Enriched gas-drive (injection d'un gaz riche) : le tampon miscible est créé par les hydrocarbures intermédiaires contenus dans le gaz même.

Les hautes pressions, souvent difficiles à réaliser, constituent l'inconvénient marqué de ce procédé. L'avantage par contre est le fait qu'une régénération des conditions de miscibilité est possible dans le gisement, si ces conditions disparaissent par suite de l'extension des deux zones de transition.

2. CONSIDÉRATIONS THÉORIQUES ET REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

2.1. Mécanisme d'un déplacement polyphasique.

Pour mieux comprendre les avantages d'un déplacement de fluides miscibles il faut rappeler les effets des forces capillaires lors des écoulements polyphasiques. Au contact de deux fluides non miscibles ou d'un fluide et d'un solide existent des attractions moléculaires qui sont à l'origine des phénomènes superficiels ou interfaciaux. Toutes les questions de mouillabilité et de perméabilité relative par exemple sont liées à ce phénomène. Pendant un déplacement non miscible il y a donc une dépense supplémentaire d'énergie afin de compenser ces forces. En outre on constate dans le cas d'un déplacement de l'huile par de l'eau que le fluide de déplacement avance plus vite dans des canaux fins que dans des gros pores ce qui peut entraîner le blocage d'une partie d'huile dans le gisement.

Pour donner un exemple, à cause de l'influence des tensions interfaciales, la récupération totale de l'huile en place lors d'un drainage d'un gisement par injection d'eau n'atteint que 30 à 50 %, pour les aires effectivement balayées, tandis que, lors d'un déplacement miscible, le pourcentage de récupération pour les aires balayées doit être d'un ordre de grandeur plus élevé (80 à 100 %).

2.2. Analyse du problème.

2.2.1. Mécanisme de la dispersion du front de déplacement.

Comme déjà indiqué, le phénomène prépondérant lors d'un déplacement miscible est la dispersion ou le mélange suivant la direction de déplacement. Entre les fluides miscibles, il se forme une zone de transition, dont la composition en fluide initial change graduellement de 100 % au début de la zone de mélange jusqu'à 0 % à la queue de cette zone. Au cours d'un déplacement on observe un élargissement de cette zone.

La formation et le comportement d'une telle zone de transition lors d'un déplacement peuvent être expliqués par les effets conjugués des différents types de mécanismes de mélange, tel que :

— mélange dû au changement de direction du vecteur vitesse, grâce aux différentes orientations des pores par rapport à la direction générale de l'écoulement ;

— mélange dû à la différence des vitesses dans les pores de dimensions différentes ;

— mélange dû à la distribution des vitesses suivant le diamètre dans un pore individuel ;

— mélange dû à la diffusion moléculaire.

2.2.2. Technique expérimentale.

Pour une meilleure interprétation de ce phénomène de dispersion, il convient à l'aide de méthodes expérimentales, d'analyser les réponses résultant d'une perturbation initiale quelconque à laquelle

on a soumis le système. Les réponses sont mesurées à un ou plusieurs points d'échantillonnage situés à une distance quelconque de l'origine de la perturbation. L'allure des courbes de réponse, dressées d'après les échantillons permet de se faire une idée sur les phénomènes qui se produisent au cours du déplacement.

Les méthodes le plus souvent employées sont les suivantes :

Méthode du signal harmonique : la concentration du fluide à l'entrée varie suivant une fonction harmonique du temps. La réponse est également une fonction harmonique mais dont les grandeurs caractéristiques, amplitude et phase, ont changées.

Méthode de l'impulsion : la perturbation initiale consiste à injecter une quantité déterminée du fluide de déplacement sous forme d'impulsion rectangulaire. La réponse est une courbe en forme de cloche (fig. 2 a).

Méthode de l'échelon : on introduit brusquement le fluide de déplacement à l'entrée du système. La réponse est une courbe en forme de S. Cette méthode est relativement facile à réaliser dans les conditions de laboratoire et l'interprétation des résultats est faite rapidement (fig. 2 b).

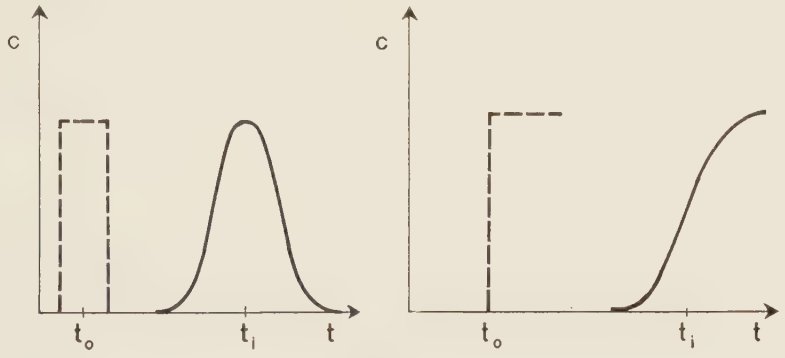


FIG. 2.

a) Impulsion. *b*) Échelon.

—— Signal. – – – Réponse.

2.2.3. Paramètres susceptibles d'influer sur la dispersion.

A priori, toutes les propriétés du milieu poreux, des fluides de déplacement et des conditions de déplacements sont susceptibles d'avoir une influence sur la formation de la zone de mélange. Le but de cette étude est d'obtenir des renseignements sur les paramètres les moins bien étudiés ou sur l'influence des paramètres pour lesquels la divergence d'opinion dans la littérature technique est la plus grande.

On peut grouper les paramètres d'après les données ou conditions qu'ils caractérisent :

Milieu poreux :
- perméabilité et porosité,
- géométrie des pores,
- granulométrie et composition des grains constituant les milieux poreux.

Fluides de déplacement :
- viscosités, en particulier rapport des viscosités,
- masses volumiques, en particulier différence entre les masses volumiques,
- coefficient de diffusion moléculaire.

Conditions de déplacement :
vitesse d'avancement du front miscible,
distance parcourue lors d'un déplacement.

2.3. Revue de la bibliographie générale.

Les différents auteurs se sont proposé d'étudier les paramètres suivants :

2.3.1. Milieu poreux.

Les travaux de HALL et GEFFEN (1), LACEY, DRAPER et BINDER (2), KOCH et SLOBOD (3), SIEVERT, DEW et CONLEY (4), indiquent que les caractéristiques géométriques du milieu poreux ne sont pas très importantes. D'autre part, BLACKWELL (5), BLACKWELL, RAYNE et TERRY (6), RAIMONDI, GARDNER et PETRICK (7), ORLOB et RADHAKRISHNA (8), ainsi que EBACH et WHITE (9), constatent une influence du milieu poreux sur la formation de la zone de mélange. Tous les auteurs ayant fait des expériences sur des roches sont d'accord sur le fait que la dispersion dans un milieu poreux consolidé est plus grande que dans un milieu non consolidé.

2.3.2. Fluides de déplacement.

Viscosité.

Pour donner une revue complète il faut examiner le paramètre viscosité, bien qu'il ne soit pas étudié ultérieurement dans ce travail.

Tous les chercheurs sont d'accord sur le fait, que si l'on utilise un fluide de déplacement de viscosité plus élevée par rapport à la viscosité du fluide de saturation, la zone de mélange croît lors du déplacement. Ces conditions sont caractérisées par le rapport des mobilités extrêmes, la mobilité M étant le rapport de la viscosité μ par la perméabilité k. Comme la perméabilité est constante dans le cas d'un déplacement miscible, ce rapport est égal au rapport des viscosités :

$$m = \frac{k_2/\mu_2}{k_1/\mu_1} = \frac{\mu_1}{\mu_2} \qquad (k_1 = k_2)$$

avec :

μ_1 et μ_2 : viscosité des fluides $\begin{cases} 1) \text{ en place} \\ 2) \text{ de déplacement.} \end{cases}$

On dira que l'on est dans un cas favorable quand $m < 1$ et dans un cas défavorable quand $m > 1$; en effet, dans ce dernier cas, le front de déplacement devient instable. Le fluide envahissant se déplace plus rapidement en certains endroits qu'en d'autres en formant des languettes, appelées digitations. Le mécanisme exact de leur propagation n'est pas encore suffisamment connu, mais on suppose que la croissance initiale est créée par de faibles hétérogénéités du milieu. HALL et GEFFEN (1) ; HENDERSON, LEDBETTER, GOVE et GRIFFITH (10) ; OFFERINGA et VAN DER POEL (11).

Masse volumique.

L'influence de l'action de la pesanteur a été remarquée pour les déplacements horizontaux s'il y a une différence entre les masses volumiques des deux fluides (BLACKWELL (5), EVERETT, GOOCH et CALHOUN (12), LACEY (2)).

Diffusion moléculaire.

Il semble que dans la littérature, les effets de la diffusion moléculaire lors d'un déplacement miscible soient sous-estimés. Du fait que la zone de transition créée par la diffusion dynamique est plus importante que celle créée par la diffusion moléculaire seule, certains auteurs ont conclu que la diffusion moléculaire ne serait pas un paramètre très important. Cette notion est reprise par HANDY (13) pour servir de base théorique à quelques expériences par lesquelles il veut démontrer qu'effectivement la diffusion moléculaire peut être négligée.

BLACKWELL (5) a trouvé que la diffusion moléculaire est le facteur prédominant dans un domaine où les vitesses sont assez faibles, tandis que la théorie de SAFFMAN (14) (15), met en évidence son véritable rôle et son importance afin de comprendre le mécanisme d'un déplacement miscible dans toute la gamme des différents régimes d'écoulement.

2.3.3. Conditions de déplacement.

Vitesse de déplacement.

Une analogie des phénomènes dans un milieu poreux a été faite avec le cas d'un déplacement miscible dans un capillaire. La plus grande partie des auteurs trouvent que la vitesse de déplacement influe sur le comportement de la zone de transition (4) (5) (6). KOCH et SLOBOD (3), HENDERSON (10), sont cependant arrivés au résultat contraire.

Distance parcourue.

Le seul paramètre sur l'importance duquel tous les auteurs sont d'accord, aussi bien au point de vue théorique qu'au point de vue expérimental, est la distance parcourue pendant un déplacement idéal ($\mu_1 = \mu_2$, $\rho_1 = \rho_2$). La largeur de la zone de transition croît avec la racine carrée de cette distance. La vérification expérimentale de ce point a été faite dans les œuvres de VON ROSENBERG (18), KOCH et SLOBOD, BURCIK et CASHDOLLAR (16), BRIGHAM, REED et DEW (17) et plusieurs autres.

Après cette revue bibliographique, la première impression est la grande différence des points de vue sur ce sujet. Ceci peut être expliqué par le fait que les auteurs ont expérimenté dans des conditions très variées et souvent mal définies. L'idée qui devrait s'imposer à priori pour toute étude de phénomènes faisant intervenir la mécanique des fluides serait de donner des résultats sous forme adimensionnelle, mais dans la plupart des ouvrages antérieurs la présentation des résultats n'était pas faite ainsi. Donc, certains résultats ne sont valables que pour les cas spécifiques étudiés et ne permettent pas de généralisations.

Dans la partie bibliographique qui suit sont présentées les théories les plus importantes concernant le mécanisme du déplacement miscible idéal dans un milieu poreux homogène.

2.4. Les théories sur le déplacement de fluides miscibles dans un milieu poreux.

2.4.1. Déplacement miscible dans un tube capillaire.

Le cas le plus simple d'un déplacement miscible est le déplacement d'un fluide par un autre dans un tube capillaire. Ceci a été étudié en détail par TAYLOR (19) (20), qui montrait que pour des grandes valeurs de la diffusion moléculaire, qui joue surtout radialement, le transport de masse dans la direction longitudinale peut être caractérisé par un coefficient de dispersion effective K_c. Si la viscosité ne dépend pas de la concentration, la loi de distribution des vitesses suivant un diamètre est parabolique. En particulier, sur l'axe du tube la vitesse prend la valeur u_0 qui est deux fois plus grande que la vitesse moyenne u_m.

S'il n'y a pas de diffusion et si le fluide de déplacement est, à l'origine des temps, situé d'un seul côté d'une section droite, la distribution du fluide de déplacement le long du capillaire suivra la même loi parabolique. L'éruption du fluide de déplacement à la sortie (*breakthrough*) se produirait à l'instant même où le volume du fluide de déplacement injecté correspond à la moitié du volume total du capillaire.

La diffusion jouant radialement s'oppose à la distribution du fluide de déplacement suivant la loi parabolique. Elle a tendance à établir une distribution uniforme des molécules du fluide déplacé et du fluide déplaçant dans une section droite du tube, de sorte que le gradient radial de la concentration devient presque nul. Ainsi, une zone de transition entre les deux fluides est créée, dans laquelle la concentration change graduellement dans la direction axiale. Pour des coefficients de diffusion croissants, la zone de transition s'aplatit de plus en plus (fig. 3).

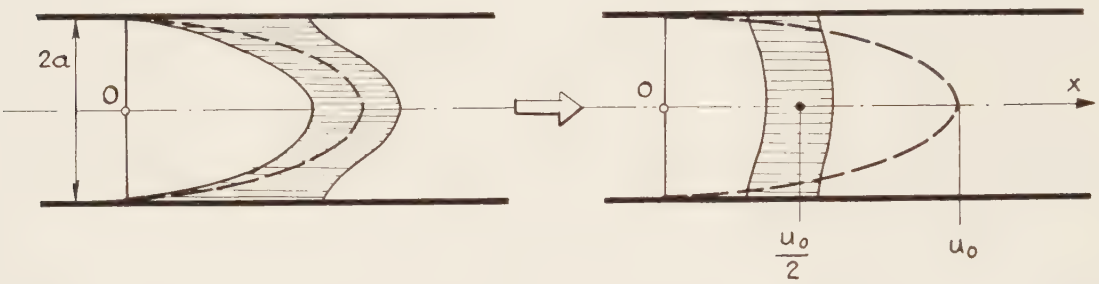


FIG. 3.

a) Zone de transition pour une diffusion lente. *b*) Zone de transition pour une diffusion rapide.

——— Profil de distribution des vitesses.

Dans le cas considéré par TAYLOR (19), deux limitations s'imposent : le coefficient de diffusion moléculaire doit être assez grand pour que la distance moyenne $\sqrt{2DT}$ parcourue par les molécules dans la direction radiale pendant le temps de parcours moyen T soit du même ordre de grandeur ou plus grand que le diamètre $2a$ du capillaire :

$$\sqrt{2DT} \geqslant 2a \qquad \text{ou} \qquad T \geqslant \frac{2a^2}{D} \tag{2.1}$$

Tandis que, l'autre limitation exige que le temps de parcours moyen soit suffisamment court pour ne pas permettre que la diffusion moléculaire établisse une zone de mélange dans la direction de l'axe du capillaire :

$$\sqrt{2DT} > L \qquad T \leqslant \frac{L^2}{2D} \tag{2.2}$$

où L est la longueur du capillaire.

En supposant que la concentration est symétrique autour de l'axe Ox du tube, la concentration C est une fonction de r, x et t seulement. L'équation de la diffusion est la suivante :

$$D\left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}\right) = \frac{\partial C}{\partial t} + u_0\left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)\frac{\partial C}{\partial x} \tag{2.3}$$

avec :

D : coefficient de diffusion moléculaire ;

u_0 : vitesse maximale ;

a : rayon du tube ;

t : temps ;
r : distance à partir de l'axe ;
x : abscisse prise le long de l'axe.

On fait l'hypothèse simplificatrice suivante : on suppose que le coefficient de diffusion moléculaire est indépendant de la concentration, ce qui n'est pas rigoureusement exact pour des solutions de sels.

Dans le cas considéré, on peut supprimer le terme $\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$ parce que d'après les limitations [2.1] et [2.2] :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \ll \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial C}{\partial r} \qquad [2.4]$$

en posant :

$$Z = \frac{r}{a}$$

l'équation [2.3] devient :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} + \frac{1}{Z}\frac{\partial C}{\partial Z} = \frac{a^2}{D}\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{a^2 u_0}{D}(1 - Z^2)\frac{\partial C}{\partial x} \qquad [2.5]$$

En négligeant l'effet de la diffusion moléculaire dans la direction axiale, tout le transport de masse longitudinal est causé par la distribution parabolique des vitesses (convection). Considérons la dispersion autour d'un plan qui avance à la vitesse moyenne constante $u_m = 1/2\, u_0$ et posons :

$$x_1 = x - \frac{1}{2} u_0 \cdot t$$

l'équation [2.5] devient :

$$\frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} + \frac{1}{Z}\frac{\partial C}{\partial Z} = \frac{a^2}{D}\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{a^2 u_0}{D}\left(\frac{1}{2} - Z^2\right)\frac{\partial C}{\partial x_1} \qquad [2.6]$$

Dans ce système d'axes en translation, la vitesse moyenne à travers les plans pour lesquels $x_1 =$ constante est nulle, le transport de C à travers un de ces plans est fonction uniquement de la variation radiale de C.

Tenant compte des hypothèses simplificatrices faites ci-dessus, D indépendant de C, et l'expression donnée par TAYLOR (19) :

$$\frac{L}{u_0} = \frac{a^2}{(3{,}8)^2 D} \qquad [2.7]$$

On a vu que le gradient transversal de la concentration devient rapidement négligeable. La petite variation radiale de C peut être calculée par l'équation [2.6] ou $\partial C/\partial x_1$ est supposé indépendant de Z :

Avec la condition à la limite, exprimant le fait que la paroi du tube est imperméable :

$$Z = 1 \text{ et } \frac{\partial C}{\partial Z} = 0 \qquad [2.8]$$

on obtient la solution :

$$C = C_{x_1} + A\left(Z^2 - \frac{Z^4}{4}\right) \qquad [2.9]$$

avec C_{x_1} valeur de C pour $Z = 0$ et A étant une constante.

On trouve pour A en substituant [2.9] en [2.6] :

$$A = \frac{a^2 u_0}{8D} \cdot \frac{\partial C}{\partial x_1} \qquad [2.10]$$

Le taux de transport de C à travers une section $x_1 = C^{te}$ est :

$$Q = -2\pi a^2 \int_0^{x_1} u_0 \left(\frac{1}{2} - Z^2\right) CZ\,dZ \qquad [2.11]$$

dont la solution avec [2.9], [2.10] et [2.11] est :

$$Q = -\frac{\pi a^4 u_0^2}{192D} \cdot \frac{\partial C_{x_1}}{\partial x_1} \qquad [2.12]$$

Avec les limitations imposées aux conditions initiales les variations radiales en C sont tellement petites par rapport à celles en direction axiale que, si C_m est la concentration moyenne dans une section transversale, $\partial C_{x_1}/\partial x_1$ devient presque identique à $\partial C_m/\partial x_1$ de sorte que l'on peut écrire [2.12] sous la forme :

$$Q = -\frac{\pi a^4 u_0^2}{192D} \cdot \frac{\partial C_m}{\partial x_1} \qquad 2.13$$

On applique l'équation de conservation de la masse de telle façon que :

$$\frac{\partial C}{\partial x_1} = -\pi a^2 \frac{\partial C_m}{\partial t} \qquad [2.14]$$

En groupant les équations [2.13] et [2.14], on obtient :

$$\frac{a^2 u_0^2}{192D} \cdot \frac{\partial^2 C_m}{\partial x_1^2} = -\frac{\partial C_m}{\partial t} \qquad [2.15]$$

On voit donc que la dispersion de la concentration moyenne C_m par rapport à un plan avançant à la vitesse moyenne $1/2\,u_0$, obéit à une équation tout à fait analogue à celle de la diffusion moléculaire (loi de Fick), mais avec un coefficient de diffusion apparent K_c :

$$K_c = \frac{a^2 u_0^2}{192D} = \frac{a^2 u_m^2}{48D} \qquad [2.16]$$

Introduisons brusquement un fluide avec une concentration uniforme C_0 en traceur (méthode de l'échelon) dans un tube capillaire initialement rempli d'un fluide sans traceur ($C = 0$). Les conditions initiales sont les suivantes :

pour $t = 0$:

$C_0 = 0$ pour $X > 0$,

$C = C_0$ pour $X < 0$.

La solution de l'équation [2.15], pour ces conditions, a la forme :

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2}\,\mathrm{erf}\left(\frac{X - u_m t}{2\sqrt{K_c \cdot t}}\right) \qquad [2.17]$$

$+$ lorsque $X - u_m t > 0$

$-$ lorsque $X - u_m t < 0$

avec :

$$\operatorname{erf} Z = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^Z e^{-Z^2} dZ$$

La répartition de la concentration moyenne le long de l'axe obéit donc à une loi en fonction d'erreur.

Ainsi si ΔL désigne la longueur de la zone de transition entre les concentrations 0,9 C_0 et 0,1 C_0, on trouve :

$$\operatorname{erf}\left(\frac{\Delta L}{4\sqrt{K_c \cdot t}}\right) = 0{,}8 \qquad [2.18]$$

et ΔL d'après les tables de la fonction d'erreur pour cette valeur :

$$\Delta L = 3{,}62\sqrt{K_c \cdot t} \qquad [2.19]$$

Les résultats de ces études, qui ont été vérifiés expérimentalement par TAYLOR dans la gamme des vitesses en question, sont les suivants :

1) La longueur de la zone de transition (ΔL) croît proportionnellement à la racine carrée du temps t, tandis que la distance parcourue par les particules fluides est proportionnelle à t.

2) La longueur de la zone de transition, dépendant du coefficient de dispersion K_c, est une fonction de la vitesse moyenne du déplacement, car K_c est aussi une fonction de la vitesse [2.16].

ARIS (21) a généralisé les résultats de TAYLOR (19) (20) pour le cas de l'écoulement dans un capillaire de section quelconque où la répartition des vitesses locales peut suivre une loi autre que la loi parabolique et où le coefficient de la diffusion moléculaire peut varier avec la concentration. Il montre que la dispersion du fluide de déplacement peut être représenté par les moments de la concentration de son centre de gravité dans la direction de l'écoulement. Les relations qui existent entre les moments successifs (de plus grand ordre) sont celles d'une loi qui tend vers la loi normale.

La concentration moyenne est donc dispersée selon la loi de Gauss autour d'un centre de gravité qui se déplace à la vitesse moyenne de l'écoulement. Le coefficient de la diffusion effective est obtenu à partir de la variance de cette distribution. C'est :

$$K_e = D + k\frac{a^2 u_m^2}{D} \qquad [2.20]$$

avec :

K_e : coefficient de la diffusion effective ;
D : coefficient de la diffusion moléculaire ;
a : dimension caractéristique de la section ;
u_m : vitesse moyenne du déplacement ;
k : nombre sans dimension, qui dépend de la section transversale du tube (pour une section circulaire, k est égal à 1/48).

2.4.2. Application des résultats obtenus dans un tube capillaire à un milieu poreux.

Extension des phénomènes du déplacement miscible dans un capillaire à un milieu poreux.

Les résultats trouvés dans le cas d'un déplacement miscible dans un tube capillaire ne sont pas intégralement applicables à l'écoulement dans un milieu poreux, où le mélange des deux fluides est en partie dû aux conditions complexes rencontrées par la particule fluide lors de sa progression suivant un chemin tortueux à travers des pores irréguliers. La théorie simple du tube capillaire

donne pourtant une base pour les diverses considérations qualitatives à partir desquelles on veut étudier le phénomène plus complexe du déplacement miscible dans un massif poreux.

Justification de cette extension par certaines analogies et leurs limitations.

L'extension qualitative des résultats concernant le mélange dans un tube capillaire est justifiée par certaines analogies avec le milieu poreux :

On peut s'imaginer que le fluide s'écoulant dans un pore sera distribué selon un certain profil de vitesse. On a vu que dans un capillaire cylindrique le gradient transversal de la concentration est supprimé par la diffusion moléculaire en formant une zone de transition dans la direction d'écoulement. Dans le pore les gradients transversaux de concentration doivent être diminués également, mais la zone de transition longitudinale dans le pore sera plus irrégulière.

Dans l'ensemble d'un milieu poreux on peut supposer que la diffusion moléculaire atténue les différences de concentration dans la direction transversale, qui sont créés par la convection dynamique (1). La différence des diamètres des pores ainsi que leur arrangement quelconque dans l'espace font varier le vecteur-vitesse d'écoulement en grandeur et direction. Cette variation du vecteur-vitesse d'une particule fluide le long d'un filet fluide fait qu'après un temps très court d'écoulement des filets fluides de différentes concentrations se trouvent côte à côte. La diffusion moléculaire peut maintenant intervenir pour rendre uniforme la concentration perpendiculairement à la direction de l'écoulement dans le pore. Les limites de cette analogie sont les suivantes :

Le phénomène de convection dynamique établi par la variation du vecteur-vitesse n'a pas du tout la même allure dans le milieu poreux que dans le cas régulier d'un tube capillaire. La variation du diamètre des pores ainsi que la tortuosité du parcours suffiraient déjà pour établir une zone de transition par mélange mécanique entre les deux fluides en l'absence de la diffusion moléculaire.

Représentation des milieux poreux par des modèles simples.

Avant de passer à l'étude du milieu poreux, il sera fructueux pour le développement des idées d'examiner le cas de certains modèles simples. La représentation du milieu poreux par un modèle ordonné de capillaires a déjà servi à diverses fins (études des caractéristiques de la pression capillaire, etc.).

Faisceau de tubes capillaires parallèles non interconnectés.

KLINKENBERG (22) a voulu étudier la distribution des rayons de pores d'un milieu poreux naturel par un déplacement de deux fluides miscibles. Il a assimilé le milieu poreux à un faisceau de capillaires rectilignes et tenu compte des résultats de TAYLOR (19) pour le traitement mathématique de son modèle. La distribution des rayons de pores obtenue par KLINKENBERG est qualitativement et quantitativement très différente de celle obtenue par les méthodes conventionnelles utilisant la pression capillaire par injection de mercure (PURCELL). Il en faut conclure que son modèle du faisceau de capillaires ne convient pas pour étudier le déplacement miscible.

Modèle de deux capillaires parallèles interconnectés.

Tenant compte de ce fait DEFFRENNE (23) a étudié un modèle de deux capillaires parallèles, de diamètres différents, interconnectés à intervalles réguliers. L'arrivée des particules du fluide déplaçant à une interconnexion n_i ou à la sortie est donnée par une loi binômiale pour un nombre d'interconnexions suffisamment grand. Donc pour un très grand nombre n d'interconnexions, cette loi

(1) Convection dynamique : mélange par brassage, dû au contact des filets fluides différents à une jonction de plusieurs pores ; dans un tube capillaire dû à la déformation du front de fluide envahissant à cause du profil de distribution de vitesses.

tendra vers une loi normale. L'écart-type de cette répartition dans le temps, à la $n^{ième}$ connexion tend à devenir proportionnel à la racine carrée de n, pour n très grand. Mais l'écart-type est une mesure de l'épaisseur de la zone de transition, qui croît comme la racine carrée de la longueur du chemin parcouru, parce que le nombre n_i des interconnexions est proportionnel à la distance.

$$\sigma^2(t_n) = n\,\frac{8\mu l^2}{\Delta p}\cdot\frac{1}{r^2+R^2}\left(\frac{1-\dfrac{r^2}{R^2}}{1+\dfrac{r^2}{R^2}}\right)+\sigma^2(t_0) \qquad [2.21]$$

avec :

$\sigma(t_n)$: écart-type au moment t_n ;
$\sigma(t_0)$: écart-type au moment initial t_0 ; il tend vers o lorsque $n \to \infty$;
r, R : rayons des deux capillaires ;
l : longueur entre deux connexions n_i et n_{i+1} ;
Δp : différence de pression entre deux interconnexions ;
μ : viscosité.

Modèle d'un réseau de capillaires orientés au hasard.

Dans le but de schématiser le milieu poreux, SAFFMAN (14) a considéré un réseau de capillaires orientés au hasard. Les propriétés de ce modèle sont les suivantes : les capillaires sont rectilignes et ont la même longueur l et le même rayon a. L'ensemble est homogène et isotrope statistiquement.

Le déplacement dans le réseau d'une particule fluide imaginaire se fait par une succession de trajets rectilignes, où chaque pas correspond au passage dans un capillaire. La direction et la durée de chaque pas sont variables. Les conditions extérieures du déplacement doivent être telles que la vitesse moyenne u ou le gradient de pression moyen sont constants et gardent la même direction. En outre, l'écoulement macroscopique doit obéir à la loi de Darcy.

Dans un premier travail, SAFFMAN (14) a traité le problème comme un processus de marche aléatoire. Il s'y borne à étudier le cas où la dispersion sera due principalement à un mélange mécanique et il ne considère la diffusion moléculaire que sommairement.

SAFFMAN part de l'hypothèse que la trajectoire d'une particule à travers un réseau de capillaires orientés au hasard peut être traitée comme une marche aléatoire, changeant de direction au hasard.

La vitesse pendant chaque pas dépend de sa direction. Ceci est valable si :

$$D \ll ul$$

Le déplacement d'une particule seule après n pas sera donc une variable aléatoire dont les composantes parallèles aux coordonnées sont :

$$\left.\begin{aligned} X_n &= \sum_1^n l\cos\theta \\ Y_n &= \sum_1^n l\sin\theta\cos\varnothing \\ Z_n &= \sum_1^n l\sin\theta\sin\varnothing \end{aligned}\right\} \qquad [2.22]$$

l'axe des x étant parallèle à la direction générale de l'écoulement.

θ : est l'angle de la direction du pas individuel et de la direction générale de l'écoulement $\left(0 < \theta < \frac{\pi}{2}\right)$;

et $\emptyset$: l'angle d'azimut de la projection du pas sur le plan $y\,z$ avec l'axe y ($0 \leqslant \emptyset \leqslant 2\,\pi$).

Le temps pour n pas sera la variable aléatoire :

$$T_n = \sum_{1}^{n} t \qquad \sum_{n}^{n} l/v \qquad [2.23]$$

Il fait une analyse mathématique approfondie pour obtenir la distribution de probabilité de ces variables aléatoires et pour formuler les propriétés statistiques de la marche aléatoire d'une particule.

Il montre ensuite que la dispersion d'un nuage de particules autour de son centre de gravité peut être dérivé de considérations statistiques pour une seule particule si t ou n sont suffisamment grands pour que leurs trajectoires deviennent statistiquement indépendantes. Il définit alors le coefficient de la diffusion effective par :

$$K_L = \frac{1}{2T}(X - uT)^2 = \frac{1}{2}\,ul\,S^2 \qquad [2.24]$$

$$S^2 = \frac{1}{3}\,ln\,\frac{3ut_0}{l} - \frac{1}{12} \qquad [2.25]$$

si :

$$\frac{ut_0/l}{n^{1/2}\left(ln\,\frac{3ut_0}{l}\right)^{1/2}} \ll 1 \qquad [2.26]$$

avec :

K_L : coefficient de la diffusion longitudinale ;
X : déplacement dans la direction longitudinale ;
T : temps pour effectuer le déplacement X ;
u : vitesse moyenne ;
l : longueur du pas ;
S^2 : variance ;
n : nombre de pas ;
t_0 : $l^2/2D$;
D : coefficient de diffusion moléculaire.

Ainsi la dispersion longitudinale ne statisfait à une équation du type de la diffusion que dans le cas où T est suffisamment grand pour que la condition [2-26] soit remplie. Sinon, K_L sera une fonction de T.

Dans un deuxième travail, SAFFMAN (15) tient mieux compte du rôle de la diffusion moléculaire, et il se place dans le régime d'écoulement où ses effets sont comparables au mélange par convection. Dans ce cas, le traitement mathématique du problème par des fonctions d'autocorrélation de la vitesse est préférable à un traitement par processus de marche aléatoire.

Outre les conditions de base déjà posées par SAFFMAN (14), on a :

Le temps $\left(t = \frac{a^2}{8D}\right)$ nécessaire pour faire disparaître le gradient radial de concentration dans la

section transversale d'un capillaire, doit être petit par rapport au temps de parcours d'une particule fluide dans le capillaire qui est de l'ordre de l/u. Ceci est exprimé par les conditions suivantes :

$$\frac{u}{D} \ll \frac{8l^2}{a^2} \qquad \text{ou} \qquad \frac{l}{u} \gg \frac{a^2}{8D} \qquad [2.27]$$

avec :

D : coefficient de la diffusion moléculaire ;
u : vitesse moyenne dans les pores ;
a : rayon du capillaire ;
l : longueur du capillaire où $a < l$.

La vitesse moyenne dans un capillaire faisant un angle θ ($0 < \theta < 1/2\,\pi$) avec la direction générale de l'écoulement est :

$$v = 3u\cos\theta \qquad [2.28]$$

Si les conditions [2.27] sont remplies, la dispersion dans le réseau se produit comme si la vitesse locale dans chaque capillaire était uniforme et que les particules suivaient un mouvement brownien à travers une section qui se déplace à la vitesse v. Cette supposition basée sur les résultats de TAYLOR (19) simplifie l'application de la théorie d'autocorrélation.

Si $u(t)$ est la composante de la vitesse suivant la direction x d'une particule imaginaire qui participe à un processus aléatoire la covariance entre les vitesses u en t et t' est : $\overline{u(t)\,u(t')}$.

Le déplacement suivant la direction x après un temps t est :

$$X(t) = \int_0^t u(t')\,dt' \qquad [2.29]$$

et :

$$\frac{dX}{dt} = u(t) \qquad [2.30]$$

or :

$$\frac{d}{dt}\overline{X^2(t)} = \overline{2X(t)\,u(t)} = 2\int_0^t \overline{u(t)\,u(t)'}\,dt' \qquad [2.31]$$

Dans le cas où $u(t)$ est une fonction aléatoire stationnaire du temps :

$$\overline{u(t)\,u(t')} = R(t-t') = R(\tau) \qquad [2.32]$$

où $R(\tau)$ est la fonction de corrélation de la vitesse u pour un intervalle de temps τ.

Si t est grand par rapport au temps pour lequel les vitesses pour des intervalles de temps successifs sont effectivement corrélés entre elles :

$$\overline{X}^2 \sim 2t\int_0^\infty R(\tau)\,d\tau - 2\int_0^\infty \tau R(\tau)\,d\tau \qquad [2.33]$$

En supposant que les intégrales sont convergentes :

$$\frac{X^2}{2t} \sim \int_0^\infty R(\tau)\,d\tau \qquad [2.34]$$

or l'expression $\int_0^\infty R(\tau)\,d\tau$ peut être considérée comme la diffusivité effective.

Dans le cas considéré, il y a deux contributions différentes au calcul de la covariance $S(\tau)$:

$S_1(\tau)$: l'intégrale correspondant aux conditions initiales telles que la particule n'est pas sortie du capillaire après un temps τ ; donc $\cos\theta = \cos\theta'$;

$S_2(\tau)$: l'intégrale correspondant aux conditions pour lesquelles la particule sera dans un autre capillaire après un temps τ.

$$S(\tau) = S_1(\tau) + S_2(\tau) \qquad [2.35]$$

Après le calcul de S_1 et S_2, SAFFMAN (15) démontre que la dispersion longitudinale dans un réseau de capillaires est décrite asymptotiquement par un coefficient de diffusion apparent K_L tel que :

$$K_L = \frac{1}{3} D + \frac{3}{80} \frac{a^2 u^2}{D} + \frac{l^2 u^2}{4} \int_0^1 (3\xi^2 - 1)^2 \frac{M \cdot \coth M - 1}{K_s M^2} d\xi \qquad [2.36]$$

où :

$$M = \frac{3}{2} \frac{u \cdot l \cdot \xi}{K_s} \qquad \text{et} \qquad K_s = D \frac{3}{16} \xi^2 \frac{a^2 \cdot u^2}{D}$$

avec :

ξ : $\cos\theta$;

u : vitesse moyenne dans les pores ;

l et a : longueur et rayon du capillaire.

Or le premier terme à droite correspond à la contribution de la diffusion moléculaire dans la direction longitudinale.

Le deuxième correspond à la contribution de la diffusion apparente dans un capillaire seul traité par TAYLOR (19).

Le troisième tient compte de l'interaction complexe entre diffusion moléculaire et dispersion dynamique.

Extension de ces résultats sur un milieu poreux.

S'il n'y a pas de mélange mécanique (fluide au repos, $u = 0$), la formule de SAFFMAN [2.36] donne :

$$K_L = 1/3 D$$

Les résultats expérimentaux de CARMAN (50) et de PENMAN (47), obtenus dans les milieux poreux, quand le rôle de la convection dynamique est négligeable, indiquent cependant :

$$K_L \simeq 2/3 D$$

Un réseau de capillaires, comme celui étudié ici, peut représenter qualitativement un milieu poreux. Pour être étendue au cas du milieu poreux, l'équation [2.36] peut s'écrire :

$$K_L = K_m + \frac{3}{80} \frac{a^2 u^2}{D} + \frac{1}{4} l^2 u^2 \int_0^1 (3\xi^2 - 1) \frac{M \cdot \coth M - 1}{K_s M^2} d\xi \qquad [2.37]$$

où :

K_m : coefficient de diffusion dans le milieu poreux, quand $u = o$, qui remplace la valeur $D/3$ valable uniquement pour un réseau de capillaires orientés au hasard.

Pour un milieu poreux, les deux grandeurs l et a doivent être définies. Pour un empilement de sphères ou pour des sables non consolidés SAFFMAN prend $l = d_p$, où d_p est le diamètre moyen des grains ou des billes.

D'autre part, K_L dépend peu de la valeur de a/l tant que :

$$\frac{a}{l} \leqslant \frac{1}{5} \quad \text{ou} \quad \frac{a}{d_p} \leqslant \frac{1}{5} \qquad [2.38]$$

En posant donc :

$$d_p = l \quad \text{et} \quad l = 5a$$

l'évaluation numérique de l'équation [2.37] donne pour le domaine $\frac{ud_p}{D} < 1$:

$$K_L = K_m + \frac{1}{15}\frac{u^2 \cdot d_p^2}{D} \qquad [2.39]$$

et pour le domaine :

$$1 \ll \frac{ud_p}{D} < \frac{8l^2}{a^2}$$

$$K_L = \frac{ud_p}{6}\left\{ n\frac{3}{2}\frac{ud_p}{6} - \frac{7}{12} - \frac{1}{8}\frac{a^2}{2}\frac{ud_p}{D}\right\} + K_m + \frac{4}{9}D + o\left(\frac{D^2}{ud_p}\right) \qquad [2.40]$$

La concordance de l'expression [2.40] avec les valeurs expérimentales sera donnée plus tard sur un graphique (fig. 11).

D'autre part, SAFFMAN (15) a pu traiter le problème de la diffusion transversale qui est négligée dans les autres théories.

DE JOSSELIN DE JONG (49) a traité le problème de la diffusion dynamique longitudinale et transversale d'une façon analogue à celle de SAFFMAN mais pour un domaine de mélange plus restreint.

Extension directe au milieu poreux des études du déplacement miscible dans un capillaire.

Le premier à faire l'extension au milieu poreux du phénomène de déplacement miscible dans un tube capillaire a été VON ROSENBERG (18).

Il s'est borné cependant à vérifier par des expériences que le déplacement miscible peut être décrit par une équation du même type que celle de la diffusion moléculaire :

$$K\frac{\partial^2 C}{\partial x_1^2} - \frac{\partial C}{\partial t} = 0 \qquad [2.41]$$

ou :

$$x_1 = x - ut$$

Ici, le coefficient de la diffusion effective K n'est plus défini à l'aide de grandeurs connues comme le K_c de TAYLOR. On peut montrer que K dépend de la vitesse du déplacement.

BLACKWELL (5) (6) explique qualitativement le mécanisme du mélange dans un milieu poreux par des vitesses différentes sur les diverses lignes de courant, le rôle de la diffusion moléculaire étant d'effectuer le transport d'une particule fluide d'une ligne à l'autre. Il est le premier à représenter les résultats expérimentaux, K en fonction de u, sous forme réduite. Avec K/D en ordonnée et un paramètre de vitesse sans dimensions $\frac{a_p u}{D}$ en abscisse. Le choix de cette dernière expression est justifié par des considérations de similitude. Elle est analogue au nombre de Péclet utilisé pour étudier le transfert de chaleur, mais avec le coefficient de diffusion moléculaire à la place de la diffusivité thermique. Nous l'appellerons le nombre de Péclet de diffusion moléculaire Pe_D. Le choix de a_p « rayon » de la particule a été fait en analogie avec le déplacement dans un capillaire. (Il vaut mieux prendre le diamètre de la particule d_p). L'avantage de la représentation sans dimensions est

évidemment que l'on peut rassembler et comparer des résultats de différents auteurs obtenus avec différentes conditions expérimentales. BLACKWELL (5) met en évidence deux régimes de mélange. Dans le premier $\frac{a_p u}{D} < 0{,}04$ la diffusion moléculaire est prépondérante. Ici les valeurs de K/D sont groupées autour de 2/3. Pour $\frac{a_p u}{D} > 0{,}04$ l'importance du mélange par la diffusion dynamique devient plus grande et pour les valeurs de $\frac{a_p u}{D} > 0{,}5$ la plupart des résultats compilés par BLACKWELL peuvent être représentés par :

$$\frac{K}{D} = 8{,}8 \left(\frac{a_p u}{D}\right)^{1.17} \qquad [2.42\ a]$$

et si l'on prend le diamètre des particules d_p :

$$\frac{K}{D} = 3{,}9 \left(\frac{d_p u}{D}\right)^{1.17} \qquad [2.42\ b]$$

Malheureusement, les points expérimentaux sur la partie la plus intéressante de la courbe $\frac{a_p u}{D} > 0{,}5$ sont pris dans l'article de VON ROSENBERG qui ne donne pas assez de précisions sur le diamètre moyen des particules pour permettre de calculer le paramètre $\frac{a_p u}{D}$. Cela explique peut-être pourquoi son coefficient 3,9 est presque le double du coefficient trouvé par l'interprétation des résultats antérieurs qui a été faite dans cette étude.

Considérations basées sur l'équation de continuité.

D'autres auteurs arrivent à une équation décrivant le déplacement miscible par considération de la loi de la conservation des masses. Notamment ARONOFSKY et HELLER (24), sans essayer d'expliquer le mécanisme du phénomène, admettent qu'il y a plusieurs procédés microscopiques et mécaniques qui contribuent à la formation de la zone de transition. La seule hypothèse faite est que les effets conjugués de ces phénomènes de mélange, peuvent être décrits par l'addition d'un terme du second ordre à l'équation de continuité lors d'un déplacement linéaire de deux fluides miscibles. Le fluide A est déplacé par un fluide B ; le taux auquel B sera transporté à travers une section donnée est le produit de la vitesse moyenne u par la concentration c de B dans le mélange des fluides. Les hypothèses suivantes sont faites :

A et B sont miscibles en toutes proportions ;
Les viscosités sont égales : $\mu_A = \mu_B$;
Les masses volumiques sont égales : $\rho_A = \rho_B$;
Les fluides sont incompressibles, div $u = 0$;
Il n'y a pas de réactions chimiques ;
u et c sont des constantes dans une section.

L'équation de continuité s'écrit :

$$-u \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t} \qquad [2.43]$$

Si la distribution initiale des concentrations est représentée par un échelon, la solution de l'équation [2.43] ne prévoit aucun mélange, mais uniquement une propagation du front à la vitesse u. Ceci étant contradictoire avec les résultats expérimentaux, il faut faire une hypothèse simple : quels que soient les mécanismes contribuant au mélange, on doit supposer qu'ils opèrent d'une façon

telle que B sera transporté à travers la section quelconque proportionnellement au gradient de la concentration. On ajoute le terme du deuxième ordre par analogie avec l'équation de la diffusion dans un milieu continu :

$$K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial t} \qquad [2.44]$$

C'est une équation de la diffusion avec un terme de convection $-u\partial C/\partial x$. Le coefficient K du terme du deuxième ordre peut être appelé coefficient de la dispersion effective. On trouve des considérations identiques chez OFFERINGA et VAN DER POEL (11).

2.4.3. Théories statistiques.

Le fait que la trajectoire d'une particule imaginaire de fluide dans un milieu poreux ne puisse être déterminée d'après les équations de NAVIER parce que l'on ignore les conditions aux limites, a amené certains auteurs à utiliser des méthodes de la mécanique statistique. La méthode la plus répandue est celle qui consiste à considérer le mouvement de chaque particule à travers le milieu poreux comme un processus de marche aléatoire (SCHEIDEGGER) (25) (26) (27) (28).

Les hypothèses de base de cette théorie sont les suivantes :

a) Le milieu poreux est isotrope et homogène statistiquement, l'orientation des pores est arrangée d'une façon complètement désordonnée ;

b) Les conditions d'écoulement restent dans le régime de Darcy et les forces extérieures ne varient pas pendant le déplacement ; leur variation spatiale est très faible à l'échelle des pores ;

c) On suppose que, si l'on isole, par la pensée, une portion du milieu poreux, la loi de probabilité pour qu'une particule quelconque effectue un déplacement donné pendant un intervalle de temps τ, par exemple, est la même quelle que soit la façon d'isoler cette portion. Avec les hypothèses *a*) et *b*), ceci permet d'utiliser le principe d'ergodicité, c'est-à-dire que l'on supposera égales la moyenne temporelle du déplacement d'une particule, et la moyenne des déplacements élémentaires d'un ensemble de particules.

Pour le traitement statistique, on se fixe un temps t et on cherche la probabilité $P(x, t)$ pour qu'une particule se trouve en un point x à cet instant (cas unidimensionnel). Le temps du déplacement t est subdivisé en intervalles égaux τ. Grâce aux hypothèses présentées ci-dessus, on suppose que le déplacement microscopique ξ d'une particule pendant chacun de ces intervalles est une variable aléatoire et indépendante de la position antérieure ou postérieure. La sommation de tous ces déplacements individuels donne la position de la particule à l'instant t. On peut démontrer que la fonction $P(x, t)$ est asymptotiquement gaussienne (normale) à l'aide du théorème de LIAPOUNOFF sur l'addition des variables aléatoires indépendantes. Dans un système de coordonnées x', t' en translation avec la vitesse moyenne de déplacement u on a :

$$x' P(x', t') dx' = 0 \qquad [2.45]$$

La densité de probabilité obéit à l'équation :

$$\frac{\partial P}{\partial t'} = K \frac{\partial^2 P}{\partial x'^2} \qquad [2.46]$$

$$x = x' + ut$$

$$t = t'$$

où K est indéterminé.

En coordonnées x, t, on a :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = K \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} - u \frac{\partial P}{\partial x} \qquad [2.47]$$

Ce modèle correspond à l'image d'un processus de marche au hasard dont l'équation est bien du même type que l'équation de la diffusion.

D'après la loi des grands nombres, on peut montrer que la concentration C en fluide déplaçant en un point, dans un déplacement miscible, est égale à la probabilité de trouver une particule de fluide déplaçant en ce point. On aura donc l'équation déjà citée :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = K \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} \qquad [2.44]$$

Parmi les auteurs qui se sont servis de considérations statistiques semblables on trouve BERAN (30), RIFAÏ (31), DAY (32), KLINKENBERG et SJENNITZER (33).

Le développement de la théorie statistique par SCHEIDEGGER (29) en introduisant une fonction d'autocorrélation mène à une équation des télégraphistes.

NIKOLAEVSKIJ (34) et BEAR (35) ont essayé de trouver une solution sous forme tensorielle.

L'inconvénient des théories statistiques est que le rôle de la diffusion moléculaire n'est pas mis en évidence.

2.4.4. Théorie du mélange à l'échelle d'un pore.

Pour le modèle à la base de cette théorie, les phénomènes de mélange ont été schématisés de sorte que l'on se représente le milieu poreux comme une série de cellules de volume égal reliées en série par des capillaires de volume négligeable. On suppose que le mélange dans chaque cellule est parfait. Le traitement mathématique considère un nombre $n + 1$ de cellules de 0 à n primitivement remplies d'un seul fluide. Ensuite on cherche la probabilité de trouver dans une cellule n au bout d'un temps t, une particule fluide imaginaire introduite dans la cellule 0 à l'instant zéro.

ARIS et AUMUNDSON (51) démontrent que la distribution finale de concentration est une distribution de POISSON. Ce résultat est trouvé également par KLINKENBERG et SJENITZER (33). Ces derniers trouvent ensuite que pour un transfert intermittent entre chaque cellule la distribution est une distribution binômiale. Dans les deux cas, l'écart-type est une mesure de la longueur de la zone de transition.

Quand le nombre de cellules est suffisamment grand, on sait que les deux distributions tendent vers une distribution normale. On arrive alors à un écart-type σ qui varie comme les écarts-types des théories citées ci-dessus, donc l'épaisseur de la zone de transition croît avec la racine carrée du nombre des cellules mélangeuses parcourues, ou ce qui est équivalent avec la racine carrée de la longueur totale du système.

La critique de ce modèle est la suivante : on suppose qu'il y a un mélange parfait dans chaque cellule sans préciser par quel mécanisme exactement ce phénomène se produit (diffusion, turbulence).

D'autre part, tel que le modèle est conçu, il paraît difficile d'expliquer le phénomène de la diffusion transversale.

3. TRAVAUX DE LABORATOIRE

Le but des expériences de laboratoire était d'observer la zone de transition entre deux fluides miscibles s'écoulant dans un milieu poreux et d'obtenir les profils de concentration pour calculer le coefficient de diffusion dynamique K.

Deux limitations ont été introduites en ce qui concerne les conditions expérimentales :

— Les expériences s'effectueront avec des liquides pour lesquels la miscibilité est déjà existante aux conditions ambiantes ;

— Les expériences seront faites avec des fluides de même viscosité pour éviter la formation des instabilités qui se traduisent par des digitations au cours du déplacement.

3. 1. Le montage général.

Le montage général comprend les tubes et dispositifs contenant les milieux poreux et un moyen pour réaliser la constance du débit.

Le milieu poreux est contenu dans des tubes en verre Pyrex. Les dimensions ont été choisies en vue de respecter les conditions imposées par la théorie et d'éviter les effets parasites. La longueur théorique minimale pour laquelle l'application d'une loi du type de la diffusion soit encore permise est donnée par BEETON (36). Il faut que L soit supérieur à cinq fois la longueur de mélange, longueur exprimée en fonction du diamètre moyen des grains. La longueur pratique minimale est déterminée par le souci de minimiser les effets nécessairement perturbateurs des extrémités par rapport à l'ensemble du phénomène.

CARBERRY et BRETTON (37) ont constaté des variations des résultats considérables pour des longueurs inférieures à 60 cm, lorsque le nombre de Reynolds Re rapporté au diamètre moyen des particules et à la vitesse moyenne dans les pores est supérieur à 20. La longueur des tubes utilisés pour les présentes expériences ainsi que les nombres de Reynolds restent donc dans ces limites (tableau I). Le diamètre intérieur du tube ne doit pas à priori influencer le phénomène étudié parce que les conditions de l'expérience sont choisies de telle façon que le déplacement soit unidimensionnel. SCHWARTZ et SMITH (38) ont constaté que le profil des vitesses d'un gaz s'écoulant à travers un milieu poreux n'est pas uniforme, mais qu'il existe une survitesse près de la paroi à une distance d'à peu près un diamètre de particule (d_p). Le maximum de cette survitesse devient considérable pour des nombres de Reynolds assez élevés, mais il est négligeable par rapport à la vitesse moyenne dès que le rapport d_p/D_i est inférieur à 0,033. Le rapport le plus élevé de d_p/D_i pour les expériences présentées ici est de 0,023, donc inférieur au rapport critique (tableau I).

TABLEAU I.

CARACTÉRISTIQUES DES TUBES UTILISÉS.

TUBE	L (cm)	D_i (cm)	V_{totale} (cm^3)	V_m (cm^3)	$\frac{V_m}{V_T}$	Re_{max} $\left(\frac{d_p u}{\eta}\right)$	$\frac{d_p}{D_i}$ (maximale)
DS	75	7,55	3 340	50	0,015	13,94	0,023
Db	50	5,0	1 000	15	0,015	0,35	0,013
DPX	150	12,0	17 070	240	0,014	0,000000	0,006

Les extrémités du tube sont construites de sorte à créer les conditions initiales propres à l'expérience (échelon) et d'assurer une vitesse moyenne uniforme pour toute la section du massif pendant l'expérience. En outre, les volumes morts V_m contenus dans les extrémités des tubes ont été tenus aussi petits que possible.

Milieu poreux.

Quatre milieux poreux différents ont été utilisés :

1) Le sable de Hollande d_p 0,071 cm ;
2) Le sable du Pyla d_p 0,0355 cm ;
3) Billes de verre d_p 0,21 cm ;
4) Billes de verre d_p 0,0447 cm.

Leurs descriptions minéralogique et granulométrique sont données sur les figures 6 à 9.

Le milieu poreux est saturé sous vide avec de l'eau distillée et les caractéristiques du massif, comme le volume des pores V_p, la porosité f et la perméabilité k, sont déterminés de façon classique (tableau II).

L'écoulement est effectué grâce à une différence de pression hydrostatique, réalisée par un entonnoir à trop-plein qui maintient la charge constante pendant une expérience (fig. 4 et 5).

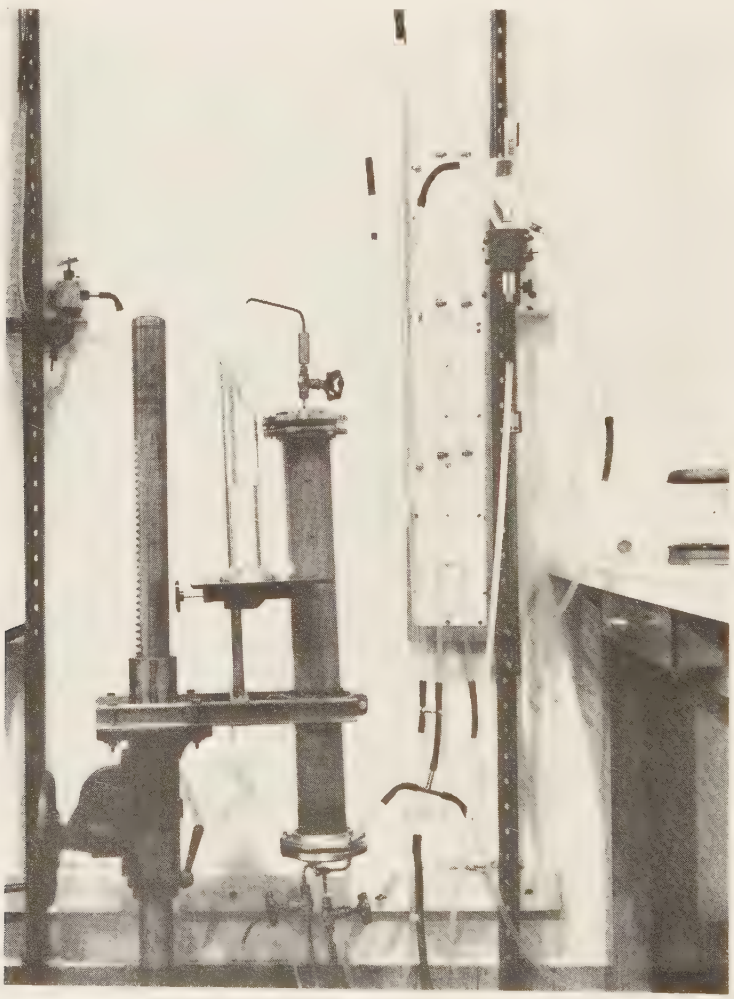


FIG. 1 Vue de l'appareillage.

TABLEAU II.

CARACTÉRISTIQUES DES MILIEUX POREUX.

TUBE	MILIEU	d_p (cm)	V_p (cm³)	f (%)	k (darcys)
Db	sable de Hollande	0,071	370	37	230
DPX	sable de Hollande	0,072	6 160	36	250
DS (I)	sable de Hollande	0,071	1 280	36	250
DS (II)	sable du Pyla	0,0355	1 135	34	40
DS (III)	billes de verre	0,21	1 300	38,8	1 200
DS (IV)	billes de verre	0,0447	1 300	38,8	118

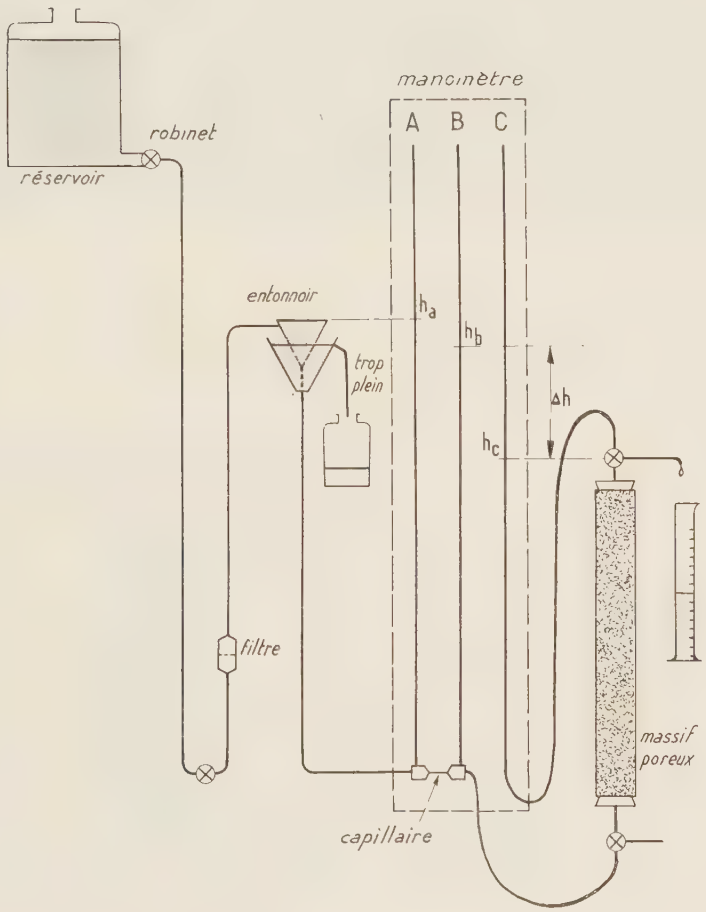
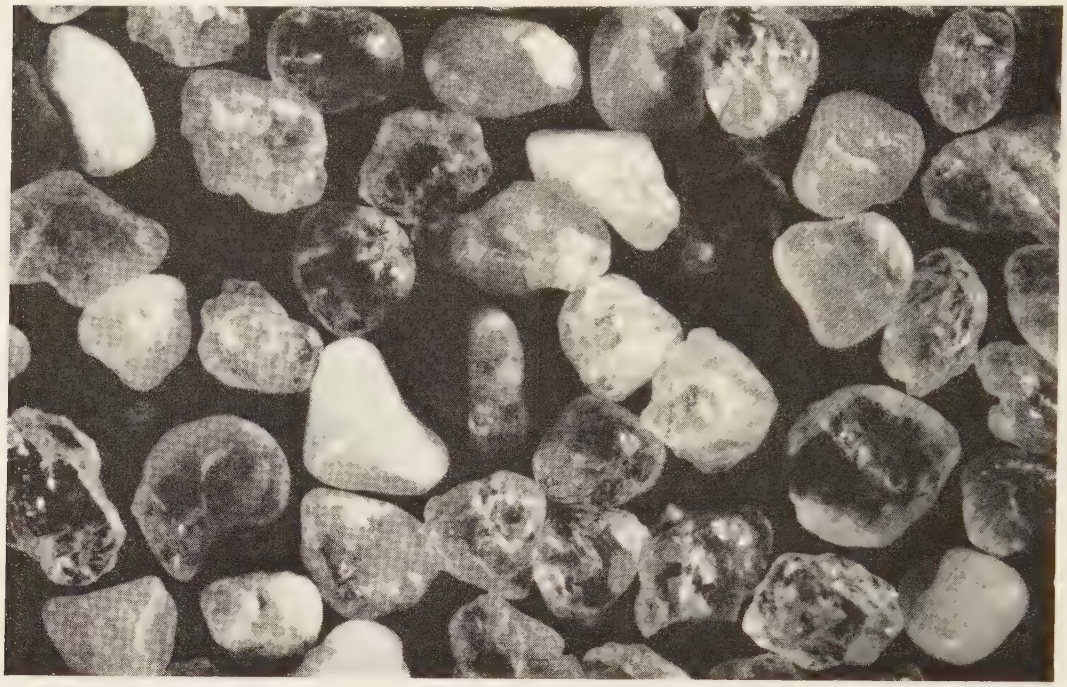


FIG. 5. — Schéma d'appareillage.

h_a-h_b = perte de charge due au capillaire. h_b-h_c = pression effectuant le déplacement dans le milieu poreux. (Δh)



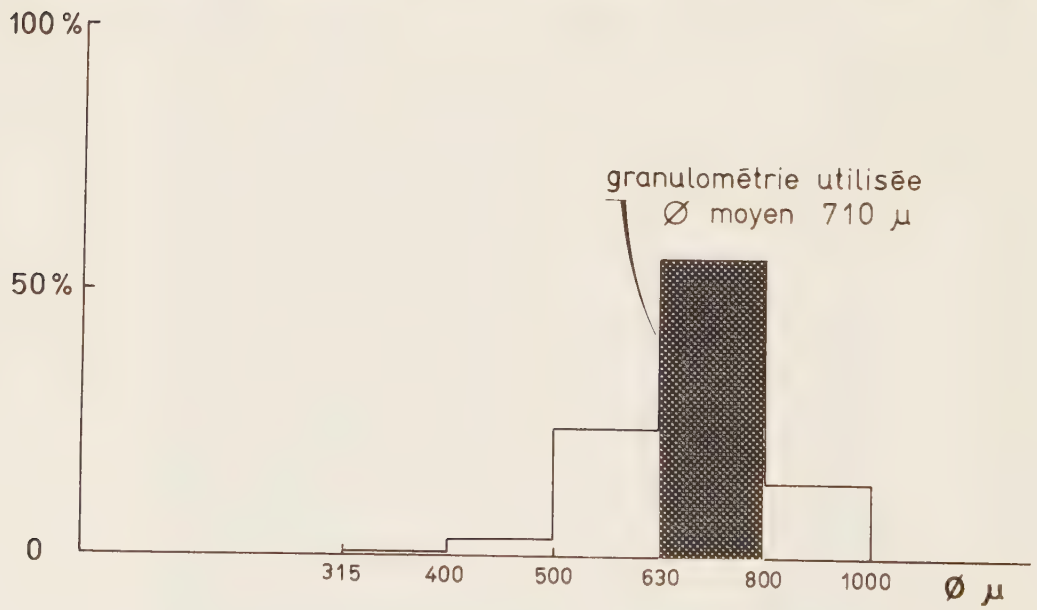


FIG. 6. — Sable de Hollande. Aspect général de la fraction granulométrique utilisée. Échelle : 15.

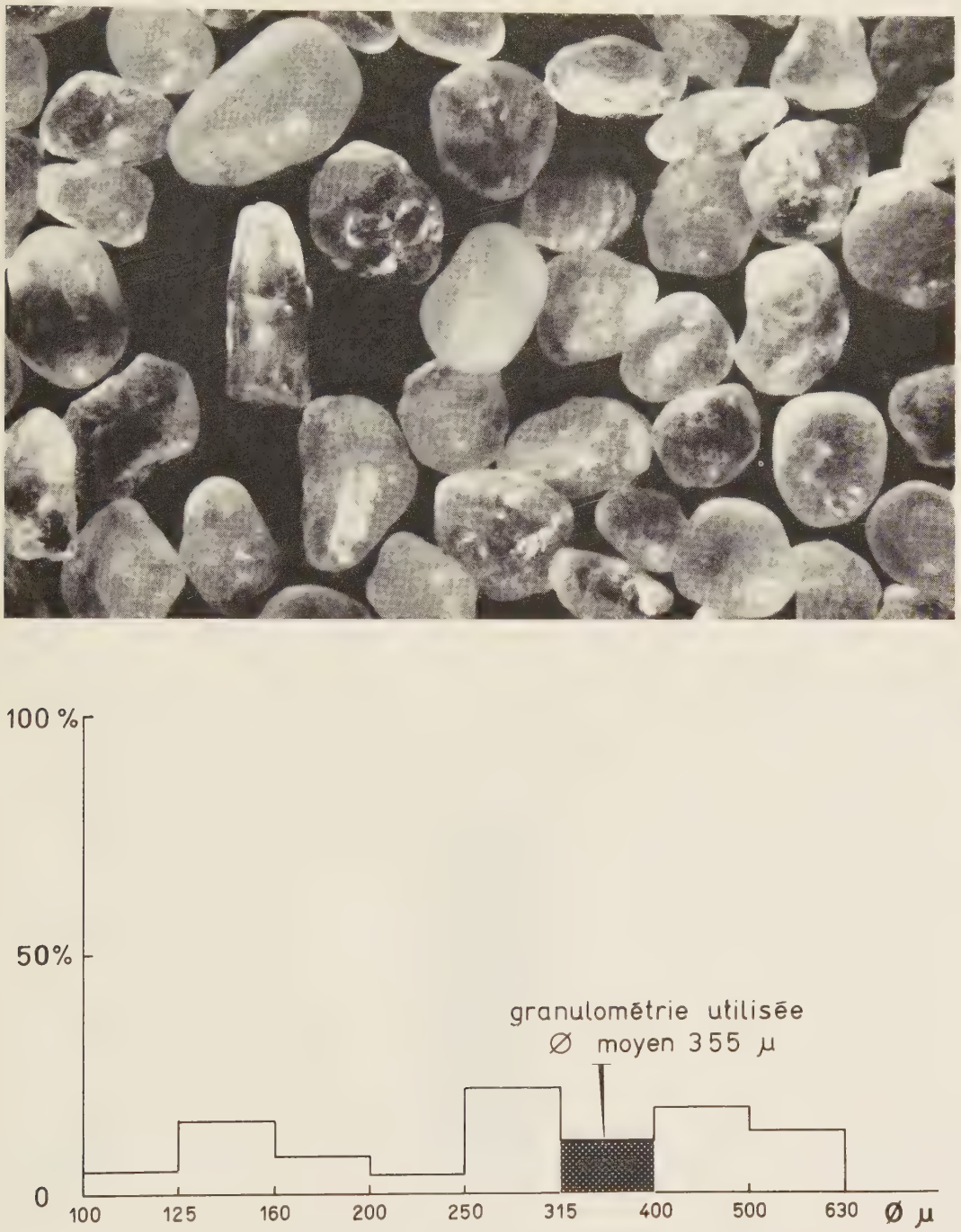
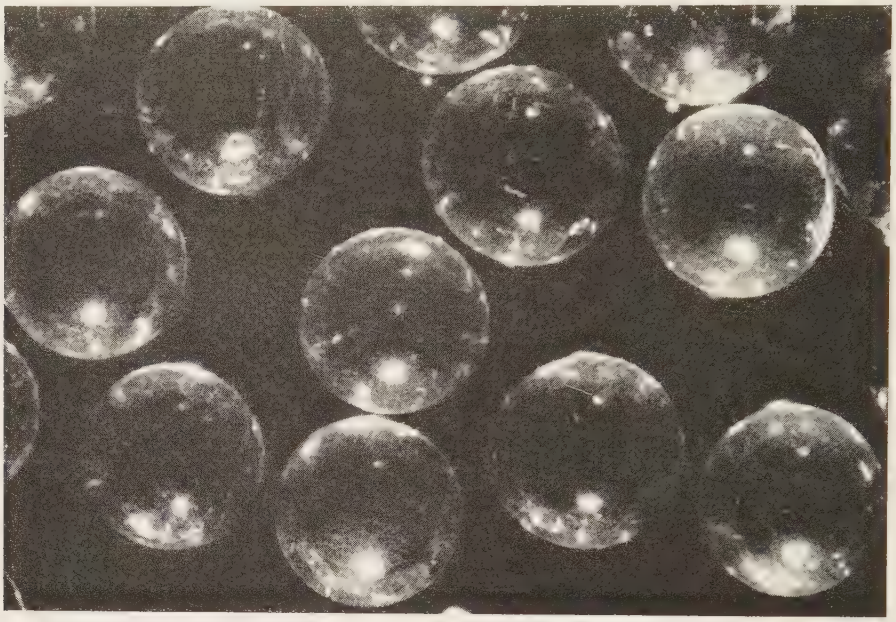


FIG. 7. — Sable du Pyla. Aspect général de la fraction granulométrique. Échelle : 40.



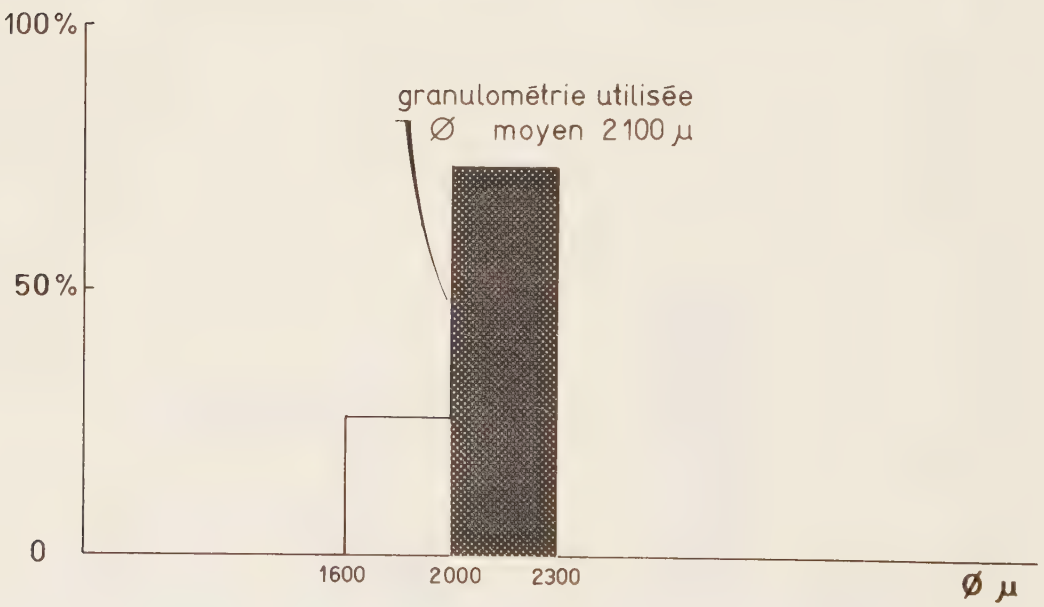
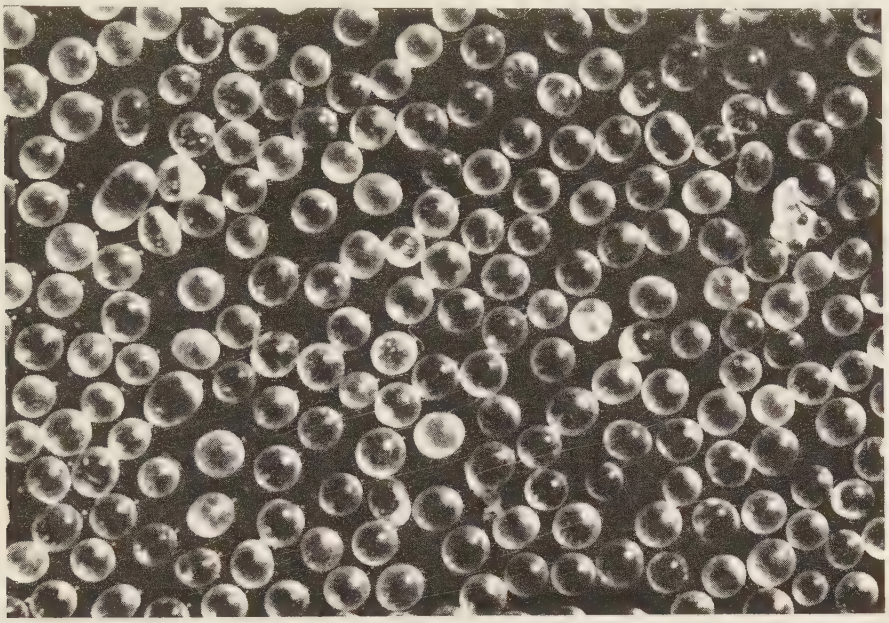


FIG. 8. — Billes de verre diamètre nominal 2 000 µ. *Centrale de verreries d'Aubervilliers.*
Aspect général de la fraction granulométrique utilisée. Échelle : 1/1.



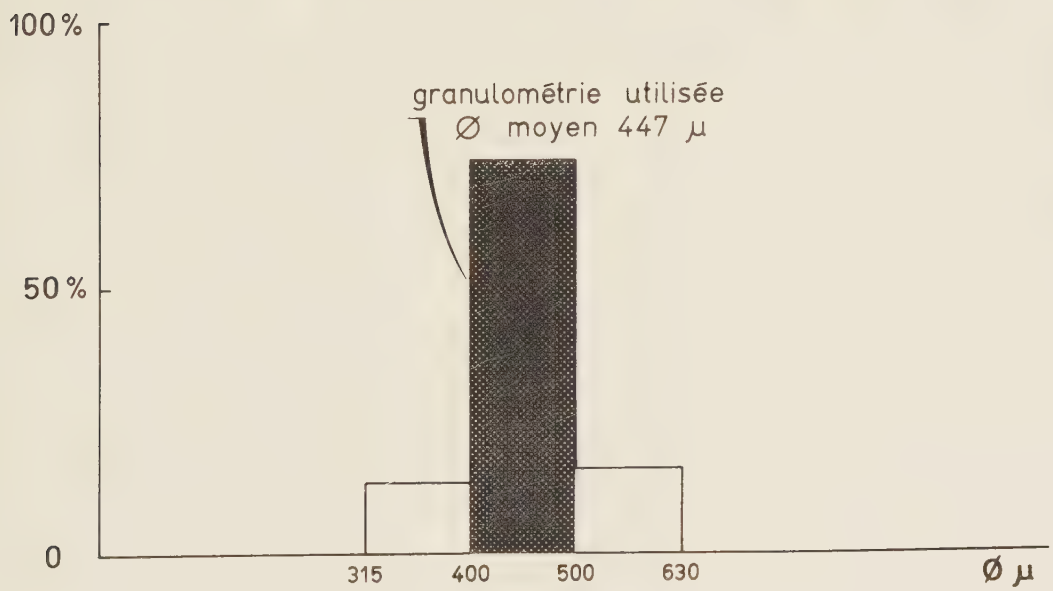


FIG. 9. — Billes de verre diamètre nominal 500 µ. *Centrale de verreries d'Aubervilliers.*
Aspect général de la fraction granulométrique utilisée. Échelle 11.

3.2. Fluides.

Pour réaliser l'égalité des masses volumiques et des viscosités, la méthode des traceurs (corps solubles) est plus facile et plus sûre que d'essayer de trouver deux corps purs miscibles avec les mêmes propriétés physiques.

Le choix des traceurs est cependant limité par certaines exigences : le traceur idéal doit donner une idée correcte de l'écoulement du fluide en question à travers le milieu poreux sans modifier les caractéristiques hydrauliques du milieu d'une part et sans être modifié lui-même par le milieu poreux ou par les fluides rencontrés d'autre part. En outre, il doit être facilement reconnaissable dans l'effluent. D'après les études de KAUFMAN et ORLOB (39) l'ion Cl^- convient parfaitement pour des déplacements d'eau si l'effet de pesanteur peut être éliminé et s'il n'y a pas d'argiles dans le milieu poreux en question. Le traceur utilisé pour les expériences est donc l'ion Cl^- en solution aqueuse. Pour vérifier les résultats obtenus avec le traceur, une expérience avec deux fluides distincts : le benzène et le butyrate d'éthylène ont été utilisés dans une seule expérience (DS 110).

Les fluides utilisés sont les suivants (tableau III).

TABLEAU III.

CARACTÉRISTIQUES DES FLUIDES UTILISÉS.

	CONCENTRATION (g/l)	CONCENTRATION (%)	NORMALITÉ (N)	ρ (20° C) (g/cm^3)	μ (20° C) (cp)	D (cm^2/s^{-1})
Eau distillée Fluide de rinçage	—	—	—	0,9982	1,00	
Fluide de saturation F1 solution $NaNO_3$ (M = 85,01)	10,5	1	0,1235	1,0049	1,0063	$1,48 \times 10^{-5}$
Fluide de déplacement F2 solution NaCl (M = 58,45)	11,05	1	0,172	1,0053	1,0123	
F1 benzène C_6H_6		—	—	0,87901	0,652	$1,8 \times 10^{-5}$
F 2 butyrate d'éthylène $CH_3CH_2CH_2\text{-}COOC_2H_5$	—	—	—	0,879	0,682	

Pour le couple de solutions $NaNO_3$ – NaCl, la différence des masses volumiques est $\Delta\rho = 0{,}0004\ g/cm^3$ et le rapport des viscosités est $\frac{\mu_1}{\mu_2} = 0{,}9941$.

Pour le benzène et le butyrate d'éthylène $\Delta\rho = 0{,}00001$ et $\frac{\mu_1}{\mu_2} = 0{,}956$.

D'après SLOBOD, BURCIK et CASHDOLLAR (16) et BRIGHAM, REED et DEW (17) même un rapport des viscosités inférieur à 1 influe sur la diffusion dynamique. D'autre part, il est prudent de rester légèrement au-dessous de l'unité pour ne pas risquer l'amorcement des phénomènes d'instabilité, ce qui peut se produire pour un rapport déjà de $\frac{\mu_1}{\mu_2} = 1{,}001$ (17).

Diffusion moléculaire.

La connaissance des coefficients de diffusion moléculaire est nécessaire pour l'étude de l'influence de la diffusion moléculaire sur le phénomène de la diffusion dynamique et pour la représentation des résultats expérimentaux sous forme réduite. Pour évaluer le coefficient de diffusion de l'ion Cl^- lorsqu'on juxtapose une solution de NaCl et de $NaNO_3$, on a utilisé la formule de VINOGRAD et MC BAIN (42).

Dans un mélange d'électrolytes avec l anions (indice i) et m cations (indice j), les grandeurs physiques seront affectées respectivement des indices i et j. Si l'indice k désigne un ion particulier le coefficient de diffusion sera donné par la formule :

$$D_K = \frac{R \cdot T}{Fa^2} \cdot \frac{\lambda K}{n_K} \left[1 \pm \frac{n_K c_K}{\overrightarrow{\text{grad}}\, C_K} \cdot \frac{\sum_{j=1}^{m} \frac{\lambda_j \overrightarrow{\text{grad}}\, c_j}{n_j} - \sum_{i=1}^{l} \frac{\lambda_i \overrightarrow{\text{grad}}\, c_i}{n_i}}{\sum_{j=1}^{m} \lambda_j \cdot c_j + \sum_{i=1}^{l} \lambda_i \cdot c_i} \right] \qquad [3.1]$$

Les notations de la formule sont :

D : coefficient de la diffusion ionique $\frac{cm^2}{s}$,
R : constante des gaz = 8,32 J/mole °K,
Fa : Faraday = 96 500 C,
T : température absolue (°K),
C : concentration en val. g/l,
$\overrightarrow{\text{grad}}\, c$: gradient de la concentration val. g/l·cm,
n : valence des ions,
λ : conductivité équivalente, en mhos·cm²/val. g.

Cette formule est valable seulement pour des solutions très diluées. Pour des concentrations plus élevées, comme dans notre cas, on supposera que l'on a le droit d'étendre cette formule comme l'ont montré les auteurs et on arrive à une expression avec un terme correctif qui tient compte du fait que l'ion Cl^- ne diffuse pas seul mais en présence des autres ions Na^+ et $(NO_3)^-$.

$$D_K (c_i, c_j) = \frac{R \cdot T}{Fa^2} \cdot \frac{\lambda K}{n_K} [1 + \varepsilon] \qquad [3.2]$$

Le λ_{cl^-} pour la température de 20° C est obtenu à l'aide du coefficient de diffusion de NaCl seul par interpolation entre les valeurs données par STOKES (40), MYSELS et STIGTER (41) pour 25° C, GORDON (52) pour 18,5° C et par le *Handbook of Chemistry and Physics* pour 15° C. Ce coefficient de diffusion est égal à $1{\cdot}30{\cdot}10^{-5}$ cm²/s. Le terme de correction entre parenthèses donne (1 + 0,139) d'où on

obtient le coefficient de la diffusion corrigé : $D_{Cl^-} = 1{\cdot}48 \times 10^{-5} \frac{cm^2}{s}$, pour une expérience où l'on a diffusion d'une solution de NaCl (N = 0,1725) dans une solution de $NaNO_3$ (N = 0,1235).

3.3. Mode opératoire.

Après rinçage et lavage, le massif est saturé en solution de $NaNO_3$. La condition initiale d'échelon unité est obtenue par remplacement complet du fluide dans la chambre de l'extrémité amont par le fluide de déplacement quelques instants avant le début brutal du déplacement. L'échantillonnage de l'effluent est effectué manuellement à la sortie. La concentration en fluide de déplacement est faite par méthode chimique (détermination de l'ion Cl^-) pour la série DS. Pour vérification des résultats obtenus avec des traceurs, une expérience avec deux couples de fluides distincts l'un de l'autre a été faite. Les liquides sont le benzène et le butyrate d'éthylène, dont les concentrations respectives sont déterminées par mesure d'indice de réfraction. Pour la série DPX, les concentrations ont été déterminées par mesure de résistivité lorsque la zone de transition passait devant les électrodes à l'intérieur du massif.

Pour l'interprétation des mesures, la vitesse moyenne du déplacement u est obtenue en divisant le débit volumique par le produit de la section S et de la porosité moyenne f. Il s'agit donc bien d'une vitesse linéaire. Pour la représentation graphique, le volume recueilli est corrigé pour être ramené au plan de référence, c'est-à-dire la face de sortie du milieu poreux. La zone de transition est représentée par une courbe où les valeurs de concentration sont portées en ordonnées, le volume injecté en abscisse.

Calcul du coefficient de la diffusion dynamique K.

Justification de la méthode.

Le comportement d'un déplacement miscible obéit à l'équation de la diffusion. Pour des conditions initiales en échelon, sa solution donne l'expression suivante :

$$\frac{C}{C_0} - \frac{1}{2} = \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left| \frac{X - ut}{2\sqrt{K \cdot t}} \right| \quad \operatorname{Sgn}(X - ut) \qquad [2.17]$$

A un instant donné t on a :

$$\frac{C}{C_0} = f_1(X)$$

Ceci correspond à une visualisation instantanée de la zone de transition qui présente une symétrie autour du point d'abscisse $L = ut$.

L'appareillage de l'étude présente, tel qu'il est conçu, permet seulement un échantillonnage à la sortie du milieu poreux. Les valeurs de la concentration sont obtenues pendant le passage du front miscible par un point situé à la distance $x = L$ de l'origine. La concentration est donc une fonction du temps qui n'est pas symétrique autour de l'instant $t = \frac{L}{u}$.

$$\frac{C}{C_0} \quad f_2(t)$$

On doit se demander dans quelle mesure il faut transformer les résultats expérimentaux obtenus à la sortie pour pouvoir calculer K. Il est également utile d'étudier dans quelles conditions on peut utiliser directement ces résultats pour le calcul de K.

On sait que la longueur de la zone de transition croît comme la racine carrée de la distance parcourue, on peut donc changer les variables de l'argument de la fonction d'erreur :

$$t = \mathrm{T}\left(\frac{\mathrm{V}_i}{\mathrm{V}_p}\right) \qquad [3.3]$$

On a :

$$x - ut = \mathrm{L}\left(\frac{\mathrm{V}_p - \mathrm{V}_i}{\mathrm{V}_p}\right) \qquad [3.4]$$

avec :

L : longueur du milieu poreux,

T : temps nécessaire pour déplacer un volume de pores (V_p),

V_i : volume injecté.

L'argument de la fonction d'erreur devient :

$$\frac{x - ut}{2\sqrt{\mathrm{K} \cdot t}} = \frac{\mathrm{L}(\mathrm{V}_p - \mathrm{V}_i)}{2\sqrt{\mathrm{T} \cdot \mathrm{K}\mathrm{V}_p \cdot \mathrm{V}_i}} \qquad [3.5]$$

et en introduisant le paramètre $\mathscr{U} = \dfrac{V_p - V_i}{\sqrt{V_i}}$, comme l'on fait Brigham, Reed et Dew (17) :

$$\frac{x - ut}{2\sqrt{\mathrm{K} \cdot t}} = \frac{\mathrm{L}}{2\sqrt{\mathrm{K}\mathrm{V}_p\mathrm{T}}} \cdot \mathscr{U} \qquad [3.6]$$

La concentration portée en fonction de ce paramètre permet le calcul du coefficient de la diffusion dynamique qu'on désignera par K_u à partir des valeurs de $\mathscr{U}$ pour C = 16 % et 84 % par exemple.

$$\mathrm{K}_u = \frac{1}{\mathrm{V}_p\mathrm{T}}\left[\frac{\mathrm{L}(\mathscr{U}_{84\,\%} - \mathscr{U}_{16\,\%})}{\sqrt{8}}\right]^2 \qquad [3.7]$$

D'autres auteurs ont calculé K à l'aide des valeurs prises directement sur le profil de concentration à la sortie. Notamment Blackwell (5) (6) qui a utilisé la formule suivante :

$$\delta l = u\,(t_{0,90} - t_{0,10}) = 3{,}62\sqrt{\mathrm{K} \cdot \mathrm{T}} \qquad [3.8]$$

δl, produit de la vitesse moyenne par l'intervalle de temps entre la sortie des concentrations relatives $C/C_0 = 0{,}10$ et $C/C_0 = 0{,}90$.

Danckwerts (44) constate seulement qu'il est permis d'utiliser des résultats obtenus à la sortie directement pour le calcul de K si la zone de transition est très petite par rapport à la longueur du milieu poreux, sans cependant donner un ordre de grandeur.

C'est Aronofsky et Heller (24) qui ont démontré qu'il est permis d'utiliser directement une formule du type de la formule [3.8] pour le calcul de K si l'expression K/Lu est inférieure à $2 \cdot 10^{-2}$.

Considérant la longueur de la zone de transition entre $C/C_0 = 0{,}9$ et $0{,}1$ ils arrivent à l'expression approchée suivante :

$$\delta l = \Delta\mathrm{L}\sqrt{1 + 0{,}4531 \cdot \frac{\mathrm{K}}{\mathrm{L} \cdot u}} \qquad [3.9]$$

avec :

δl : longueur de la zone de transition comprise entre $C/C_0 = 0{,}9$ et $0{,}1$ obtenue à l'aide de l'échantillonnage à la sortie (X = L) ;

ΔL : longueur de la zone de transition C/C_0 comprise entre 0,9 et 0,1 pour $t = L/u$.

On voit que si $K/L \cdot u$ est inférieur à 0,02, la différence entre δl et ΔL sera inférieure à 1 %.

Méthode de calcul.

Pour éviter les inconvénients et les erreurs inhérentes au calcul de K à partir des courbes de concentration sous forme de fonction d'erreur en coordonnées normales, les profils de concentration ont été portés en coordonnées galtoniennes, ou une fonction d'erreur devient une droite, dite de Henry.

La droite qui convient le mieux est tracée à travers les points expérimentaux tout en donnant plus de poids aux points autour de $C/C_0 = 0{,}5$ qu'à ceux des extrémités ($C/C_0 < 0{,}1$ et $> 0{,}9$). Le volume compris entre les points de concentration relative $C/C_0 = 0{,}16$ et $0{,}5$ ($\Delta V_{0.16}^{0.50}$) est relevé sur cette droite afin d'obtenir l'écart moyen quadratique σ sous forme réduite :

$$\sigma = \frac{\Delta V_{0.16}^{0.50}}{V_p}$$

D'où le coefficient de la dispersion dynamique :

$$K = 1/2\,\sigma^2 \cdot L \cdot u \qquad [3.10]$$

Le tableau IV montre que toutes les valeurs expérimentales pour les valeurs maximales de K dans chaque série restent au-dessous de la valeur critique de $\frac{K}{L \cdot u}$ indiquée ci-dessus. Il est donc permis d'utiliser directement les valeurs expérimentales sans passer par l'intermédiaire du paramètre $\mathscr{U}$.

TABLEAU IV.

SÉRIE	N°	$K_{max.}$ (cm²/s)	$L \cdot u$ (cm²/s)	$\frac{K}{L \cdot u}$
I	DS 79	0,07918	38,05	0,00208
II	DS 106	0,011015	16,09	0,00684
III	DS 123	0,2464	49,75	0,00495
IV	DS 156	0,04007	28,4	0,001411

Pour deux expériences cependant, DS 77 et DS 68, Ku a été calculé avec le paramètre $\mathscr{U}$. La différence entre les coefficients obtenus par les deux méthodes étaient pour DS 68 :

$$\frac{K - Ku}{Ku} = -0{,}0027, \qquad \text{et pour DS77 :} \qquad \frac{K - Ku}{Ku} = -0{,}0148$$

La différence est très faible et même de signe opposé à ce qu'elle devrait être. Elle est plutôt due à l'imprécision de la méthode graphique. Dans le cas présent il est donc illusoire d'utiliser le paramètre $\mathscr{U}$. A titre d'exemple, les résultats expérimentaux, la représentation graphique et le calcul de K pour le déplacement DS 68 sont donnés sur les figures 10 et 11.

3.4. Résultats.

Dans les études préliminaires (série Da 1 à Da 29) et (Db 30 à Db 40) le mode opératoire et la façon d'échantillonnage ont été mis au point. En outre, on a pu mettre en évidence l'importance des très faibles différences de masses volumiques du couple de fluides utilisés lorsque le déplacement a lieu en direction horizontale. (Série Db 62-67). Les résultats de la série O (Db 47-65) ont servi à la compa-

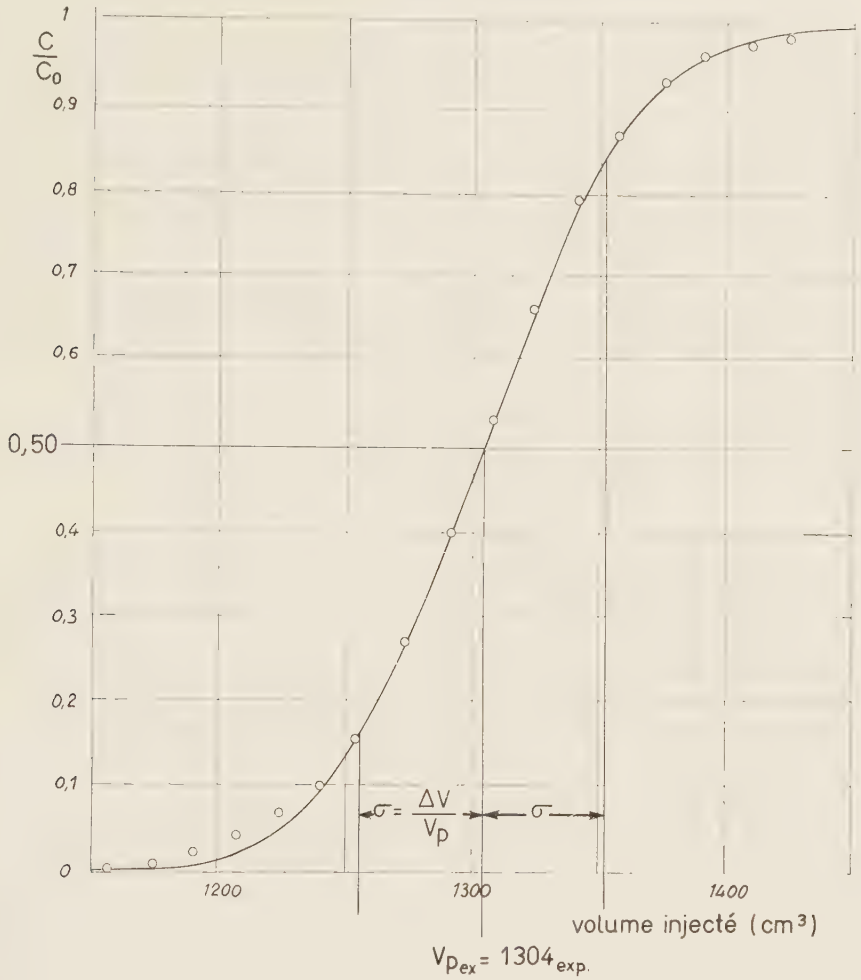


FIG. 10. — Déplacement DS 68. Concentration de l'effluent portée en coordonnées normales.

raison et vérification des résultats antérieurs. La série DPX a été spécialement conçue pour obtenir des vitesses de déplacement extrêmement lentes afin d'explorer des domaines où jusqu'ici on a fait seulement des expériences avec des gaz comme fluides de déplacement.

Série I (déplacements 68 à 96).

Cette série a eu pour but l'étude du mécanisme de déplacement à très grande vitesse pour laquelle la contribution de la diffusion moléculaire au mélange devient négligeable par rapport à la contribution de la convection.

Série II (déplacements 97 à 110).

Pour cette série de déplacements, la granulométrie du sable a été changée pour clarifier les notions sur le rôle du diamètre des particules lors d'un déplacement. Pour vérifier si les expériences, où le

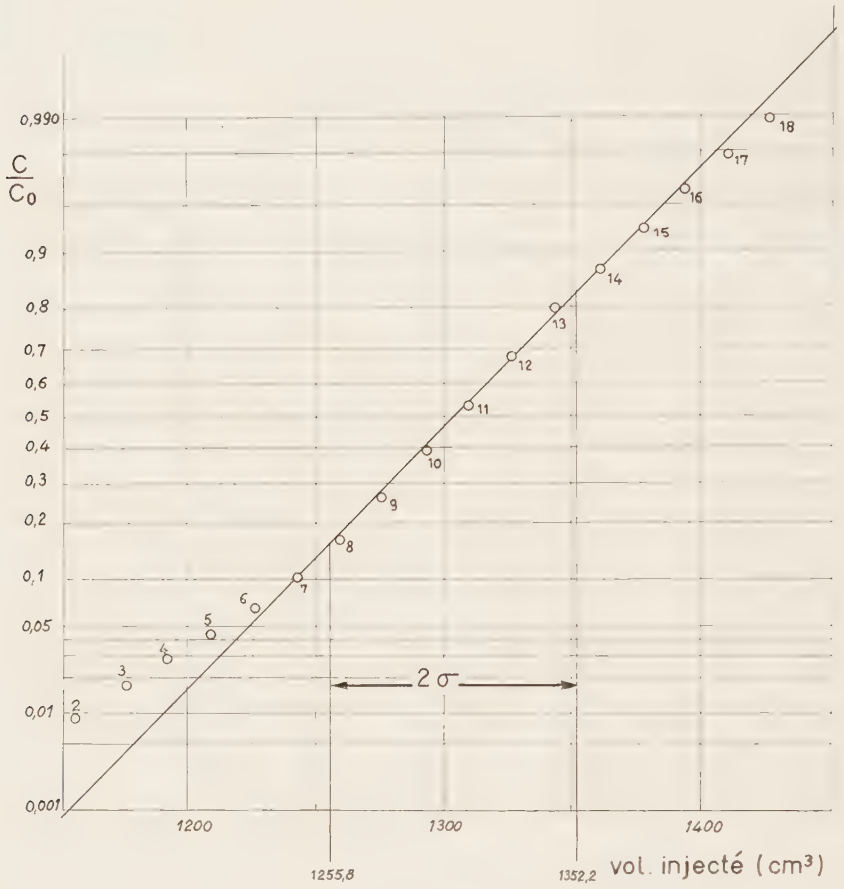


FIG. 11. — Déplacement DS 68. Concentration de l'effluent portée en diagramme galtonien.

$\Delta V_{0.16}^{0.50} = 48{,}2$ cm³. $V_p = 1305$ cm³.
$u = 0{,}01066 \pm 0{,}00002$ cm/s. $\sigma = \dfrac{\Delta V_{0.16}^{0.50}}{V_p} = 0{,}037$.
$V_{pex} = 1304$ cm³.

fluide de déplacement se distingue du fluide de saturation seulement par un traceur décrivent bien un déplacement de deux fluides miscibles différents, on a utilisé deux corps purs pour l'expérience Db 110.

Série III et IV (déplacements 111 à 134 et 135 à 158).

Afin d'avoir un milieu poreux plus régulier, des billes de verre ont été utilisées pour ces séries avec $d_p = 0{,}21$ cm pour la série III et avec $d_p = 0{,}0447$ cm pour la série IV. On note que pour de faibles $\dfrac{d_p u}{D}$ les $\dfrac{K}{D}$ sont au-dessous des autres valeurs obtenues avec du sable. Dans la série IV, les points expérimentaux présentent une grande dispersion qu'on ne peut d'ailleurs pas expliquer.

De toute façon, on peut constater que la dispersion des valeurs expérimentales est du même ordre de grandeur dans les travaux d'autres auteurs.

Tous les résultats sont représentés sur le tableau VIII.

Pour pratiquement tous les déplacements, on peut constater un certain écart entre les valeurs expérimentales et les extrémités des courbes théoriques. Cet écart est amplifié aux extrémités par l'anamorphose du diagramme. Il est ramené à ses justes proportions dans le diagramme normal (fig. 10 et 11). Les points expérimentaux se placent au-dessus de la courbe théorique au commencement et en dessous pour la fin. On pense qu'il s'agit de phénomènes parasites ou de conditions expérimentales imparfaites. Les causes possibles sont :

— l'imprécision de la mesure de concentration pour des faibles teneurs en traceur ;

— cheminement préférentiel d'une faible partie du fluide de déplacement le long des parois ou à travers des parties de plus grande porosité ;

— mauvaise réalisation des conditions initiales d'échelon unité.

En outre, on peut observer une différence entre le volume des pores déterminé par bilan de masse avant l'expérience et les différents volumes des pores expérimentaux, qui sont égaux au volume injecté V_i correspondant à une concentration dans l'effluent $C = 0{,}5\ C_0$. Cette différence reste cependant de l'ordre de 1 %.

Tableau VIII.

N°s	u (cm/s)	σ $\left(\frac{\Delta V_{0{,}40}^{0{,}50}}{V_p}\right)$	K (cm²/s)	Re $\left(\frac{d_p u}{\gamma}\right)$	Pe_{dyn} $\left(\frac{d_p u}{K}\right)$	$Pe_{moléculaire}$ $\left(\frac{d_p u}{D}\right)$	K/D
DPX							
1*	0,0125		0,000563	$9 \cdot 10^{-6}$	1,598	60,8	38,0
2*	0,0114		0,00057	$8{,}2 \cdot 10^{-6}$	1,438	55,5	38,5
3*	0,01108		0,000444	$7{,}97 \cdot 10^{-6}$	1,799	53,9	30,0
4*	0,005		0,00025	$3{,}5 \cdot 10^{-6}$	1,397	24,3	16,9
5*	0,00475		0,0001425	$3{,}42 \cdot 10^{-6}$	2,40	23,1	9,64
6*	0,00436		0,0001525	$3{,}14 \cdot 10^{-6}$	2,06	21,21	10,30
7*	0,00348		0,000104	$2{,}5 \cdot 10^{-6}$	2,41	16,9	7,03
8*	0,00351		0,000142	$2{,}5 \cdot 10^{-6}$	1,78	17,1	9,60
58_4	0,00035		0,000011659	$2{,}5 \cdot 10^{-7}$	2,165	1,7	0,788
58_5	0,00035		0,000009415	$2{,}5 \cdot 10^{-7}$	2,675	1,7	0,636
58_9	0,000348		0,000009957	$2{,}5 \cdot 10^{-7}$	2,515	1,693	0,674
DB							
47	0,00273	0,0482	0,0001636	0,0196	1,203	13,10	11,05
48	0,00263	0,0462	0,0001448	0,0189	1,310	12,6	9,78
49	0,01138	0,0635	0,0011838	0,0853	0,720	54,6	79,98
50	0,0486	0,07608	0,0072574	0,35	0,482	233,4	490,37
51	0,0463	0,0795	0,007545	0,333	0,442	222,1	509,85
52	0,01138	0,0564	0,0009333	0,0853	0,914	54,58	63,06
53	0,00311	0,0482	0,0001863	0,0224	1,203	14,94	12,59
55	0,00277	0,0462	0,0001529	0,0199	1,305	13,32	10,33
59	0,01037	0,0473	0,0005869	0,0746	1,271	49,74	39,65
60	0,0108	0,0473	0,0006112	0,0777	1,271	51,84	41,3
62	0,00975	0,0529	0,00069	0,0702	1,017	46,8	46,66
63	0,00905	0,0535	0,0006553	0,0651	0,993	43,4	44,27
65	0,01096	0,067	0,0012458	0,0789	0,633	52,58	84,17

N°s DS	u (cm/s)	σ $\left(\frac{\Delta V_{0,16}^{0,50}}{V_p}\right)$	K (cm²/s)	Re $\left(\frac{d_p u t}{\gamma_i}\right)$	Pe_{dyn} $\left(\frac{d_p u t}{K}\right)$	$Pe_{moléculaire}$ $\left(\frac{d_p u t}{D}\right)$	K/D
SÉRIE I							
68	0,0107	0,037	0,000546	0,076	1,391	51,14	36,9
69	0,01056	0,0377	0,000563	0,075	1,331	50,6	38,0
70	0,087	0,0561	0,010267	0,62	0,601	417,4	693,7
71	0,0852	0,0523	0,008738	0,6	0,6922	408,6	590,4
72	0,124	0,058	0,0156425	0,88	0,5628	594,8	1 056,9
73	0,152	0,0606	0,02093	1,07	0,516	729,2	1 414,1
74	0,1826	0,0634	0,02752	1,3	0,470	876,0	1 859,4
75	0,1693	0,0596	0,02255	1,2	0,533	812,0	1 523,6
76	0,380	0,0518	0,037978	2,7	0,71	1 823	2 566,0
77	0,3824	0,0526	0,03941	2,7	0,689	1 834,4	2 662,8
78	0,530	0,0608	0,072968	3,76	0,5157	2 542,6	4 930,3
79	0,511	0,0645	0,079184	3,6	0,458	2 451,4	5 350,3
80	0,0466	0,0555	0,005364	0,33	0,6152	223,6	362,4
81	0,0504	0,0555	0,0058015	0,36	0,6167	241,8	392,0
82	0,0281	0,0468	0,002275	0,2	0,877	134,8	153,7
83	0,0258	0,0432	0,001775	0,18	1,032	123,8	119,9
84	0,1395	0,0555	0,016042	0,99	0,617	669,2	1 083,9
85	0,137	0,0609	0,018948	0,97	0,5133	657,2	1 280,3
86	0,213	0,0588	0,027451	1,5	0,550	1 021,8	1 854,8
87	0,2094	0,059	0,027186	1,48	0,547	1 004,4	1 836,9
88	0,2966	0,064	0,045301	2,1	0,4647	1 422,8	3 060,9
89	0,280	0,0637	0,042361	1,9	0,4693	1 343,2	2 862,2
90	0,0211	0,0498	0,001952	0,15	0,767	101,2	131,9
91	0,0214	0,0479	0,001831	0,15	0,8246	102,6	123,7
92	0,222	0,0572	0,027092	1,5	0,5817	1 065,0	1 830,5
93	0,3595	0,0555	0,041382	2,5	0,6167	1 724,6	2 795,9
94	0,338	0,0568	0,040673	2,4	0,590	1 621,4	2 748,1
95	0,005065	0,0428	0,0003452	0,036	1,041	24,3	23,3
96	0,00502	0,04066	0,0003095	0,035	1,151	24,08	20,9
SÉRIE II							
97	0,0108	0,03004	0,000363	0,04	1,055	25,9	24,53
98	0,0108	0,029075	0,00034	0,04	1,126	25,9	22,98
99	0,02044	0,03172	0,0007645	0,07	0,948	49,0	51,65
100	0,02058	0,03172	0,0007711	0,07	0,946	49,36	52,1
101	0,0428	0,03282	0,001717	0,15	0,8846	102,8	116,0
102	0,0872	0,03612	0,00423	0,31	0,7316	209,2	286,4
103	0,1326	0,03546	0,00621	0,47	0,758	318,0	419,6
104	0,1502	0,03568	0,00712	0,53	0,748	360,2	481,2
105	0,1805	0,0381	0,009756	0,64	0,6567	433,0	659,2
106	0,216	0,037	0,011015	0,76	0,696	518,0	744,3
107	0,1253	0,0372	0,006455	0,44	0,689	300,6	436,1
108	0,10463	0,0398	0,006172	0,37	0,601	251,0	417,0
109	0,00549	0,0282	0,0001623	0,02	1,200	13,18	10,97
110	0,135	0,0383	0,0073721	0,48	0,650	266,2	409,5

N^{os} DS	u (cm/s)	σ $\left(\frac{\Delta V_{0,16}^{0,50}}{V_p}\right)$	K (cm^2/s)	Re $\left(\frac{d_p u t}{\gamma_i}\right)$	Pe_{dyn} $\left(\frac{d_p u t}{K}\right)$	$Pe_{moléculaire}$ $\left(\frac{d_p u t}{D}\right)$	K/D
SÉRIE III							
111	0,04437	0,06587	0,0722	0,93	0,1290	629,05	488
112	0,08676	0,07595	0,018775	1,821	0,978	1 230,40	1 267,5
113	0,1732	0,0868	0,038907	3,637	0,774	2 457,53	3 303
114	0,238	0,099587	0,88535	4,998	0,564	3 377	5 985
115	0,3088	0,09513	0,10468	6,484	0,620	4 381	7 060
116	0,342	0,09184	0,107985	7,182	0,664	4 853	7 300
117	0,3536	0,09300	0,11455	7,425	0,648	5 016	7 745
118	0,3507	0,10249	0,138085	7,364	0,534	4 976	9 325
119	0,5154	0,10307	0,20525	10,82	0,526	7 311	13 850
120	0,4849	0,10075	0,184565	10,18	0,552	6 878	12 475
122	0,621	0,09881	0,227285	13,04	0,574	8 811	15 350
123	0,6639	0,099587	0,24647	13,94	0,566	9 418	16 650
124	0,3559	0,10036	0,13439	7,473	0,556	5 049	9 090
125	0,1667	0,10075	0,6345	3,500	0,552	2 365	4 285
126	0,08673	0,11024	0,039515	1,821	0,460	1 230	2 670
127	0,04534	0,11024	0,020655	0,952	0,460	643	1 395
128	0,0480	0,082925	0,012365	1,008	0,816	681	835
129	0,02206	0,08339	0,00575	0,463	0,806	313	388,5
130	0,0121	0,059675	0,001615	0,254	1,572	172	109,2
131	0,0118	0,05560	0,001465	0,247	1,810	167	92,2
132	0,00603	0,04681	0,000485	0,1266	2,562	85,5	33,5
133	0,3987	0,0892	0,11886	8,372	0,704	5 660	8 025
134	0,0452	0,09610	0,015645	0,949	0,606	641	1 059
SÉRIE IV							
135	0,415	0,04222	0,02755	1,85	0,670	1 250	1 872,5
136	0,3756	0,0437	0,026759	1,676	0,626	1 132	1 808,5
137	0,3507	0,04015	0,0210585	1,567	0,7430	1 059	1 422,5
138	0,3270	0,04291	0,0224385	1,461	0,652	988	1 513
139	0,3521	0,04881	0,0312495	1,574	0,5030	1 064	2 110
140	0,3190	0,05256	0,032711	1,426	0,436	964	2 207
141	0,2865	0,0525	0,0293835	1,28	0,4350	865	1 987
142	0,2504	0,05787	0,031289	1,119	0,3550	756	2 115
143	0,2142	0,05472	0,02389	0,957	0,4004	647	1 612,5
144	0,1953	0,05767	0,024186	0,873	0,3610	590	1 632
145	0,1787	0,06181	0,253935	0,799	0,3146	540	1 715
146	0,1441	0,05433	0,0158025	0,644	0,4070	435	1 067,5
147	0,1279	0,04783	0,0108755	0,571	0,526	386	735
148	0,1082	0,05196	0,010895	0,483	0,4430	326,5	736
149	0,0658	0,05728	0,080525	0,294	0,3650	198,5	544
150	0,0834	0,05590	0,09703	0,373	0,3845	252	655
151	0,0444	0,05787	0,05544	0,198	0,3580	133,8	373,7
152	0,03385	0,04881	0,03005	0,151	0,502	102	203
153	0,2851	0,05354	0,0304015	1,274	0,4190	862	2 030
154	0,0195	0,04783	0,00653	0,087	0,5250	58,8	111,5
155	0,00976	0,04173	0,00635	0,043	0,676	29,05	43
156	0,381	0,05315	0,040072	1,703	0,4250	1 150	2 705
157	0,334	0,05315	0,035123	1,493	0,4250	1 009	2 370
158	0,274	0,05787	0,034235	1,224	0,35752	838	2 310

4. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

4.1. Mise en évidence de différents régimes de mélange.

Le présent travail a voulu mettre en évidence les paramètres les plus importants lors de la formation d'une zone de mélange d'épaisseur réduite entre deux fluides miscibles qui se déplacent dans un milieu poreux sous des conditions idéales ($\rho_1 = \rho_2$ et $\mu_1 = \mu_2$).

On sait que la concentration de l'effluent à la sortie d'un massif poreux au cours d'un déplacement de deux fluides miscibles, dépend de la vitesse moyenne dans les pores u, du coefficient de diffusion moléculaire D, de la longueur du massif L et de la morphologie du milieu poreux.

On peut caractériser celle-ci par deux longueurs élémentaires : le rayon moyen a des pores et leur longueur moyenne l que l'on peut supposer égale au diamètre moyen des grains d_p.

$$\sigma = f\ (u,\ \mathrm{D},\ \mathrm{L},\ d_p,\ a,\ \text{morphologie})$$

L'épaisseur de la zone de mélange dépendra donc de trois nombres sans dimensions : le nombre de Péclet de diffusion $\frac{ud_p}{\mathrm{D}}$ et les rapports L/d_p et a/d_p, donc :

$$\sigma = f\left(\frac{ud_p}{\mathrm{D}},\ \frac{\mathrm{L}}{d_p},\ \frac{a}{d_p},\ \text{morphologie}\right)$$

Le choix de la longueur élémentaire destinée à calculer le nombre de Péclet de diffusion s'est porté sur le diamètre moyen des particules dont la détermination par tamisage est relativement simple, tandis que le rayon moyen des pores a est mal défini.

Les résultats expérimentaux peuvent être présentés de trois façons différentes :

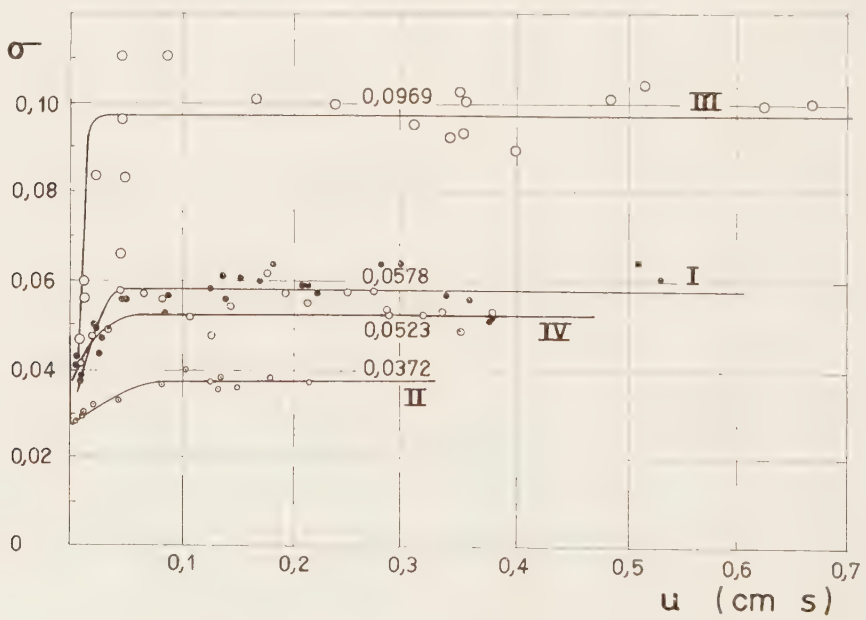


FIG. 12. — Largeur de la zone de transition σ en fonction de la vitesse moyenne de déplacement u.

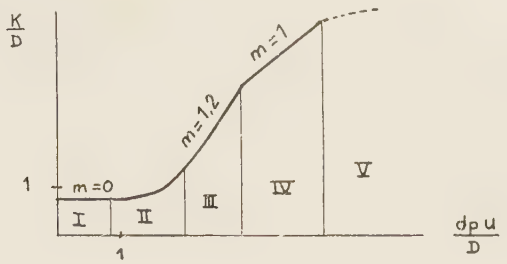


FIG. 13. — Représentation schématique des différents régimes de mélange.

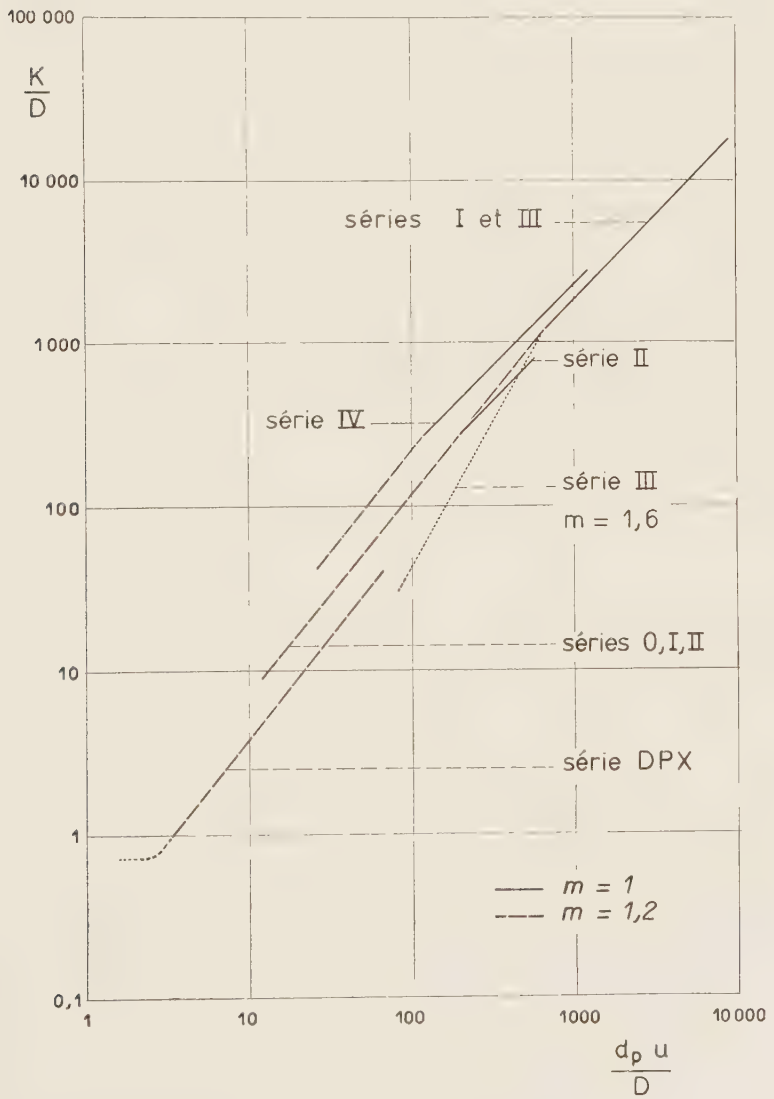


FIG. 14. — Résultats expérimentaux.

La première consiste à porter en coordonnées normales l'épaisseur réduite de la zone de transition $\sigma = \frac{V_{0.16}^{0.50}}{V_p}$ en fonction de la vitesse moyenne du déplacement u (fig. 12). On peut constater que les valeurs expérimentales de σ croissent tout d'abord très rapidement et qu'elles atteignent un palier constant pour une vitesse critique u_c. Cette représentation permet seulement une distinction de deux régimes différents de mélange.

La deuxième consiste à porter les valeurs expérimentales du coefficient de la diffusion dynamique K, obtenu à l'aide des valeurs de σ, sous la forme du rapport sans dimensions K/D en fonction du nombre de Péclet $\frac{d_p u}{D}$ sur un diagramme logarithmique (fig. 13, 14, 15, 16). Sur un tel diagramme, dont le schéma est représenté sur la figure 13, il est possible de distinguer cinq régimes de mélange désignés par I, II, III, IV et V. Chacun de ces régimes est caractérisé par un mécanisme de mélange particulier.

Cette forme de représentation convient surtout pour mettre en évidence les régimes I et III. Les résultats des études expérimentales de huit auteurs comportant 175 valeurs (références 5, 6, 7, 9, 17, 31, 32, 37) qui ont travaillé avec des conditions semblables ont été portés sur un diagramme analogue (fig. 10). Les résultats du présent travail comportant 115 valeurs expérimentales, sont représentés sur la figure 16.

Quelques auteurs, notamment Von Rosenberg, n'ont pas pu être considérés parce que des renseignements essentiels à la représentation de $\frac{K}{D} = f_1\left(\frac{d_p u}{D}\right)$ manquaient ou parce que les conditions expérimentales étaient différentes ou mal précisées.

La troisième consiste à représenter les résultats expérimentaux sur un autre diagramme logarithmique où l'inverse du nombre de Péclet dynamique $Pe_{dyn} = \frac{u d_p}{K}$ est une fonction du nombre de Péclet de diffusion $Pe_{mol} = \frac{u d_p}{D}$, soit :

$$\frac{K}{d_p u} = f_2\left(\frac{d_p u}{D}\right)$$

Dans cette représentation, l'allure de la courbe est la même que celle de la variation de l'épaisseur relative de la zone de transition. Sous cette forme, la mise en évidence du régime de diffusion dynamique pure est très nette ; celui-ci est représenté par la partie où $K/d_p u$ prend une valeur constante (fig. 17).

4.2. Considération en détail de chaque régime.

4.2.1. Régime de la diffusion moléculaire pure ou régime I.

Dans ce domaine la diffusion moléculaire effectue le mélange, la géométrie intrinsèque du milieu poreux n'intervient qu'en contribution statique. C'est-à-dire que le coefficient de diffusion apparent du fluide dans le milieu poreux est plus petit que le coefficient de diffusion moléculaire en milieu continu d'où $K/D < 1$. Ce facteur est lié à la tortuosité des lignes de flux de concentration dans le milieu poreux ; il est aussi égal au rapport de la conductibilité électrique apparente du milieu saturé à la conductivité du fluide qui le sature divisée par la porosité.

Pour que ces conditions soient remplies, il faut que le temps de passage dans un pore soit égal

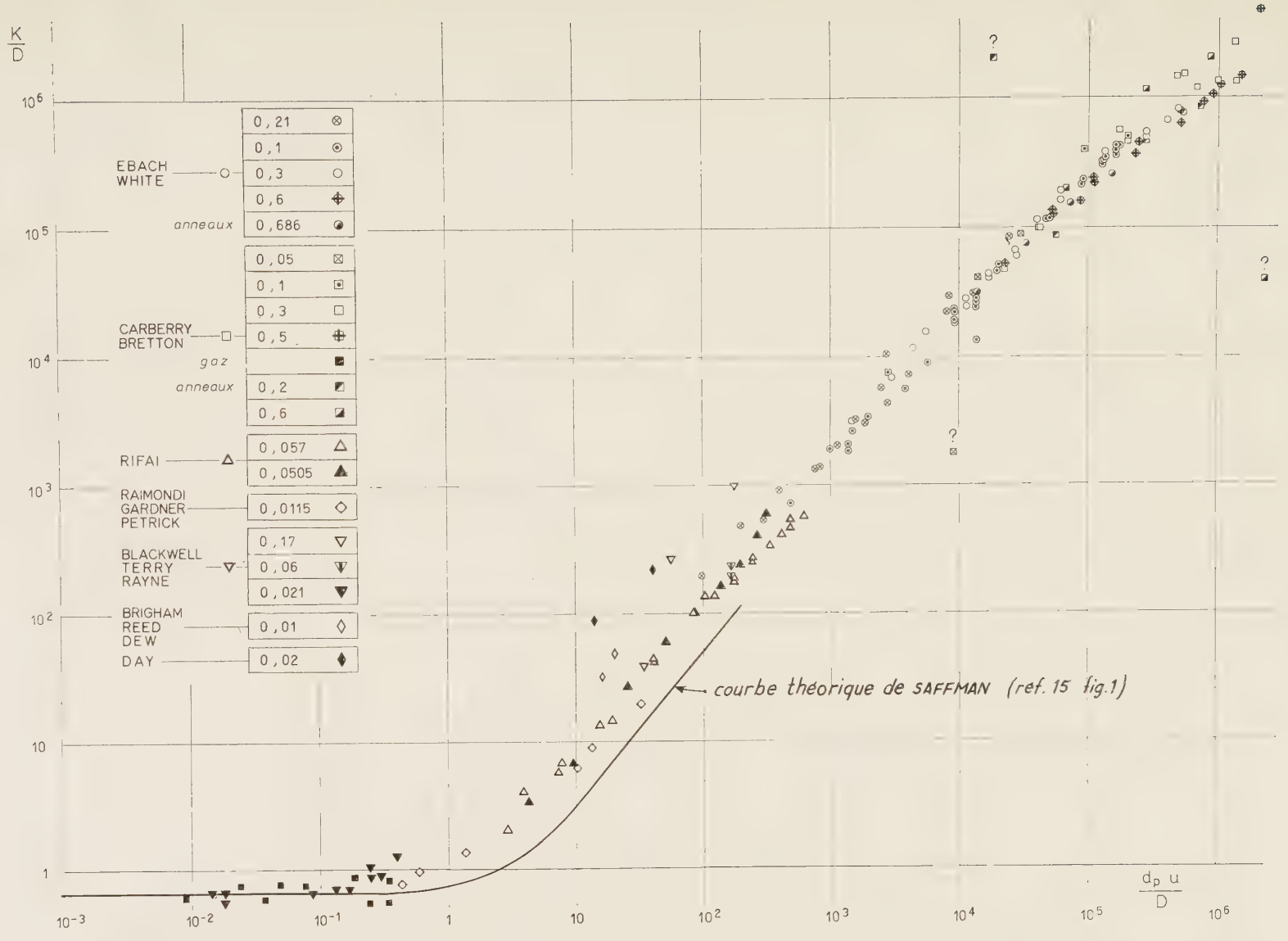


FIG. 15. — Résultats antérieurs.

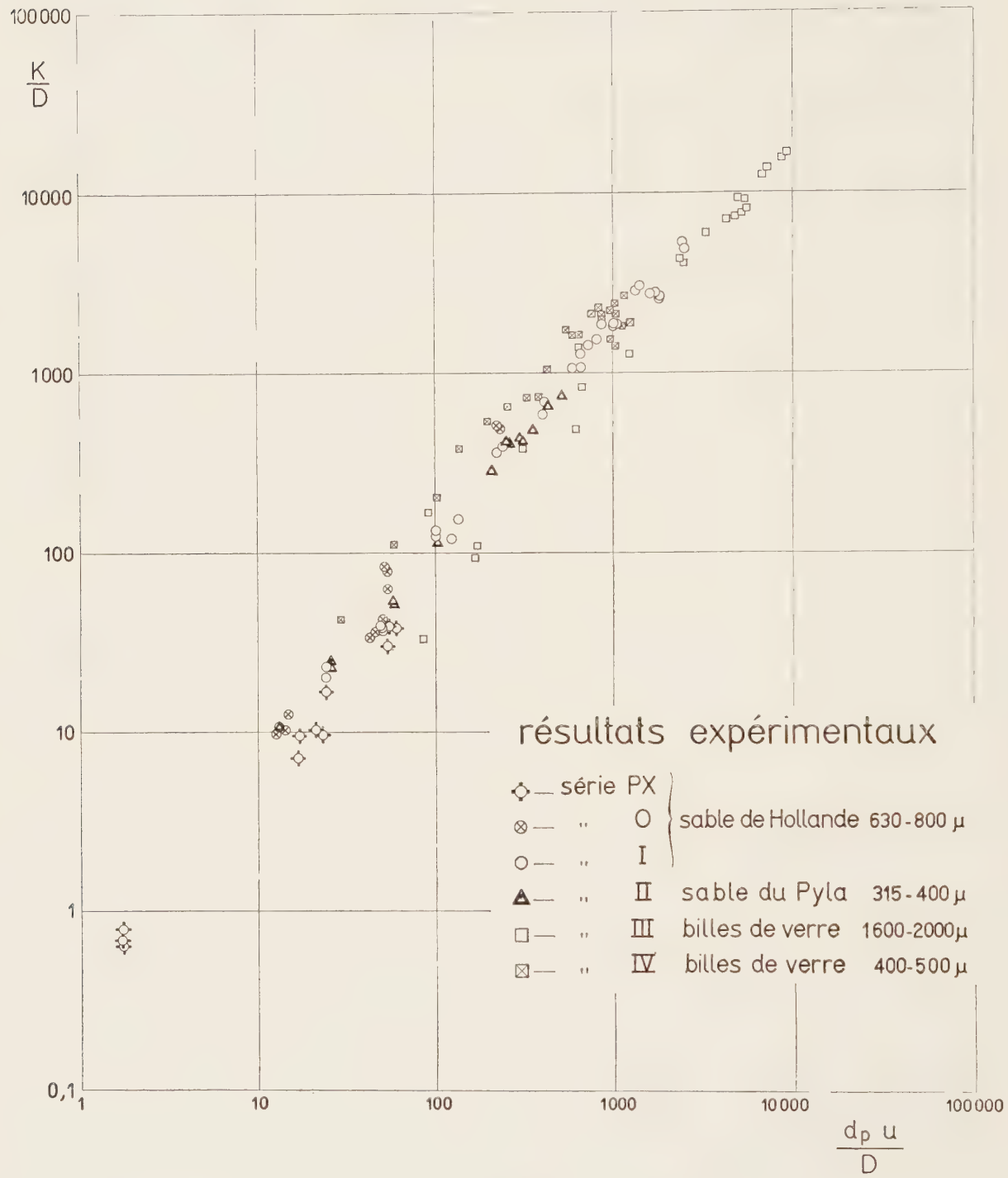

100000
K/D
10000
1000
100
10
1
0,1
1
10
100
1000
10000
100000
dp u / D
résultats expérimentaux
série PX
" O
" I
sable de Hollande 630-800 µ
" II sable du Pyla 315-400 µ
" III billes de verre 1600-2000µ
" IV billes de verre 400-500 µ

FIG. 16.

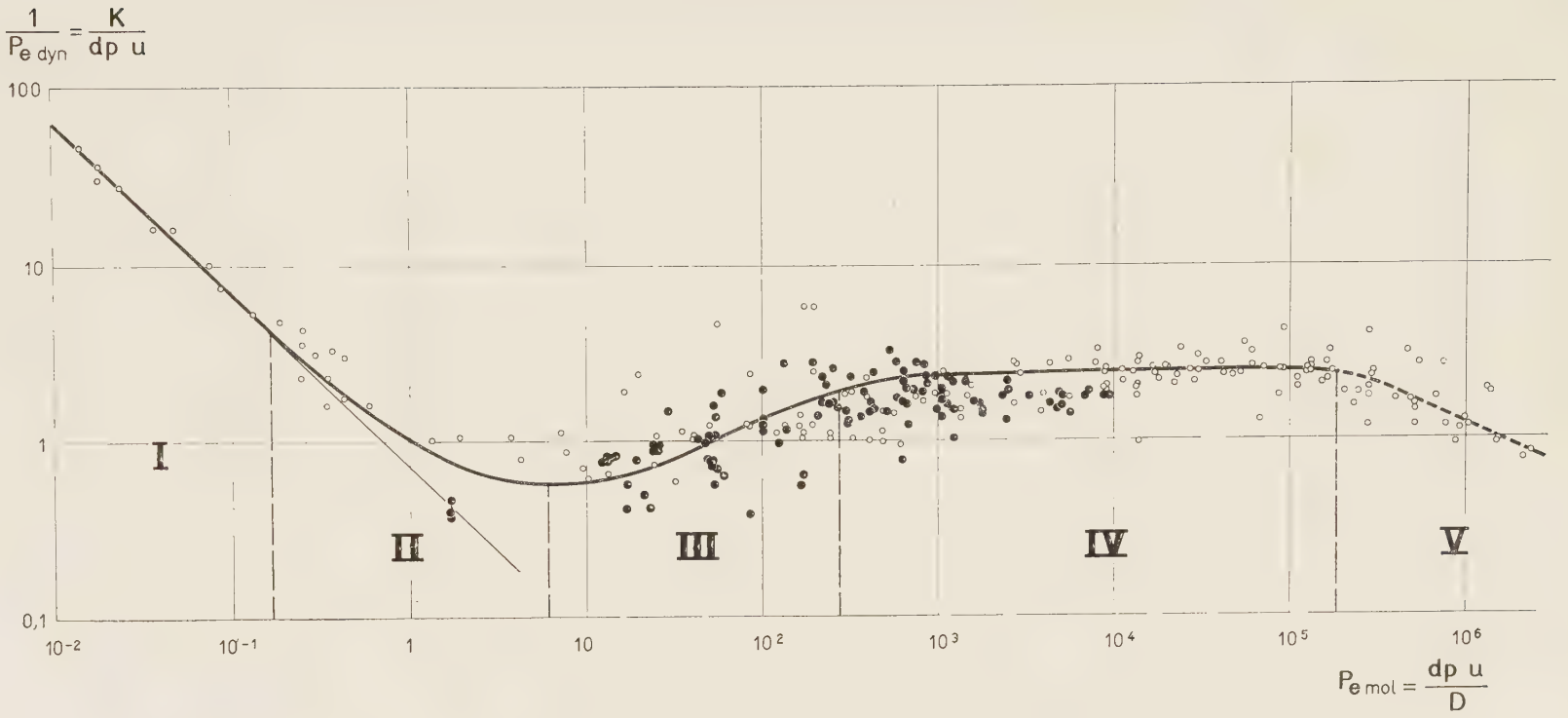


FIG. 17. — Représentation des différents régimes d'un déplacement miscible.

I : diffusion moléculaire.
II : régime de superposition.
III : régime d'interférence.
IV : diffusion dynamique pure (régime de Darcy).
V : diffusion dynamique pure (effets d'inertie non négligeables).
● : résultats expérimentaux obtenus par l'auteur.
○ : résultats obtenus antérieurement.

ou supérieur au temps t_0 nécessaire pour que la diffusion moléculaire effectue le transport de masse dans la direction longitudinale :

$$t \geqslant t_0 \qquad t_0 = \frac{d_p^2}{2D} \qquad [4.1]$$

La fonction $\frac{K}{D} = f_1\left(\frac{d_p u}{D}\right)$ prend une valeur constante.

Il existe plusieurs travaux qui traitent le cas statique $u = 0$ et qui arrivent à expliquer le phénomène de la diffusion moléculaire en milieu poreux par analogie avec la conductibilité électrique (KLINKENBERG (46), PENMAN (47)).

Dans le travail de SAFFMAN (15) se trouve une expression dérivée de l'équation générale [2.36] pour le cas où $u = 0$ dans un réseau de capillaires orientés au hasard :

$$K = 1/3D \qquad [4.2]$$

Mais pour pouvoir transposer ce résultat à un milieu poreux, il lui fallait remplacer la valeur numérique du coefficient par une valeur empirique, qui dépend de la nature du milieu poreux en question (environ 2/3 pour un sable non consolidé).

Des considérations théoriques analogues à celles de SAFFMAN (15), ont conduit LE FUR (48) à chercher un modèle de capillaires interconnectés dont la loi de probabilité d'orientation correspond à l'écoulement autour d'un empilement de sphères disposées au hasard.

Pour la valeur de K, en régime quasi statique, il trouve 2/3 D, une valeur qui effectivement est obtenue expérimentalement avec des milieux poreux constitués par des billes de verre ou des sables non consolidés (grains presque sphériques).

4.2.2. Régime de superposition ou régime II.

Sur le diagramme de la figure 13 ce régime est la zone de raccordement entre les parties quasi rectilignes I et III comprise environ entre les nombres de Péclet de 0,3 et 5. Dans ce régime, le mélange dû à la diffusion moléculaire et à la diffusion dynamique sont du même ordre de grandeur et leurs effets sont additifs.

En effet, en tenant compte des deux premiers termes de l'expression [2.37] de SAFFMAN (15), on obtient théoriquement pour ce régime :

$$\frac{K}{D} = \frac{2}{3} + \frac{1}{15}\frac{u d_p^2}{D} \qquad \text{si} \qquad \frac{a}{d_p} = \frac{1}{5} \qquad [2.39]$$

Expérimentalement, on a une courbe de même allure mais décalée vers la gauche (fig. 15).

4.2.3. Régime où la diffusion dynamique est prédominante ou régime III.

Ici la contribution principale au mélange est essentiellement celle de la diffusion dynamique. Les effets des deux différents types de diffusion ne sont plus additifs comme dans le deuxième régime, mais il y a une interférence des deux mécanismes de mélange. La diffusion dynamique intervient dans le processus de mélange par les interconnexions et son rôle principal est d'atténuer les différences de concentration dans la direction de l'écoulement. Ainsi, elle tend à diminuer la zone de mélange.

La condition pour être dans le régime d'interférence est la suivante :

$$t_1 < t \ll t_0 \qquad t_1 = \frac{a^2}{8D} \qquad [2.27]$$

ou :

$$u_1 > u > u_0 \qquad u_1 = 8\,\frac{d_p D}{a^2}$$

Les valeurs expérimentales de $\frac{K}{D}$ peuvent se mettre sur une courbe dont l'équation est :

$$\frac{K}{D} = \alpha \left(\frac{d_p u}{D}\right)^m \qquad \alpha \sim 0{,}5 \qquad [4\text{-}3]$$

m en général égal à 1,2 (fig. 14).

Certains auteurs ont comparé les effets de la diffusion dynamique, pour des vitesses de déplacement assez élevées $\left(\frac{d_p u}{D} > 5\right)$ aux effets qu'aurait eu la diffusion moléculaire, si le système était au repos, pendant un temps comparable au temps de séjour dans le milieu poreux, lors du déplacement, soit $t = \frac{L}{u}$. Évidemment, l'épaisseur de la zone de mélange créée par la diffusion moléculaire dans ces conditions sera extrêmement petite par rapport à la zone de mélange créée par la diffusion dynamique. De ce fait, certains auteurs qui n'avaient pas mis en évidence explicitement le vrai rôle physique de la diffusion moléculaire, ni l'interférence des deux mécanismes, ont cru pouvoir déduire que la diffusion moléculaire tout court pouvait être négligée, lorsque $\frac{d_p u}{D} > 5$.

On peut essayer de décrire qualitativement le mécanisme de formation de la zone de transition par une image assez simple. Cette zone s'établit du fait que les différentes particules du traceur arrivent à divers moments et en quantités variables au point d'échantillonnage. Cette différence entre les temps d'arrivée est causée par la variation du vecteur vitesse local lors du parcours. La position d'une particule fluide relative à la surface d'isoconcentration correspondant à $C = 0{,}5\ C_0$, qui se déplace à la vitesse moyenne u est déterminée par les vitesses qui règnent sur la ligne de courant que suit la particule en question.

Dans cette représentation d'un déplacement miscible, la diffusion moléculaire effectue le transport d'une particule de traceur d'une ligne de courant à l'autre. Ceci a comme effet de rendre plus uniformes les vitesses de chaque particule et ainsi de réduire leur dispersion autour de la vitesse moyenne du déplacement. Cette réduction de l'épaisseur de la zone de transition est une fonction du temps pendant lequel la diffusion moléculaire peut agir. Dans un système donné, d_p et L constants, on voit que les zones de transition sont les plus étroites pour les faibles vitesses. Lorsque les vitesses de déplacement croissent, l'épaisseur des zones de mélange croît également jusqu'au point critique où le temps de séjour dans le milieu poreux devient si court que les échanges de traceur par diffusion moléculaire entre deux lignes de courant voisines sont insignifiants. A partir de cette vitesse critique, l'épaisseur de la zone de transition reste constante parce que, dès maintenant, c'est uniquement la géométrie du milieu poreux qui détermine la forme des lignes de courant comme nous le verrons dans le paragraphe suivant.

Pour une explication plus précise du mécanisme de formation de la zone de mélange, on peut se servir de l'analogie avec le phénomène du déplacement miscible dans un capillaire. Comme hypothèse, on peut assimiler un pore à un capillaire, de même longueur et de même diamètre moyen. Les mêmes phénomènes s'y produiront, à savoir la formation d'une zone de mélange, décrite par les équations de Taylor (19) (20) et Aris (21). Le temps de passage t du traceur à travers le pore doit être assez grand (u petit) pour que la diffusion moléculaire puisse rendre uniforme la concentration dans une section transversale. L'épaisseur de cette zone de mélange ainsi que le coefficient de la diffusion apparente K_c sont, comme on le sait, fonction de u^2.

Quelles que soient les hypothèses sur l'ensemble du milieu poreux, on peut aisément concevoir

que la zone de transition macroscopique propre au milieu poreux, soit influencée par les propriétés des multiples zones de transition microscopiques propres aux pores. Donc, si ces dernières dépendent de la vitesse du déplacement, elle sera aussi une certaine fonction de la vitesse moyenne du déplacement. Le milieu poreux imposera un mécanisme de mélange dynamique qui dépend uniquement de ses caractéristiques géométriques. Il y aura interférence entre ces deux mécanismes de mélange, ce qui explique que K n'est pas une fonction du carré de la vitesse, mais d'un exposant plus faible. K serait $f(u)^2$ si l'on représentait le milieu poreux comme un faisceau de capillaires rectilignes avec le même diamètre et sans interconnexions. Ce modèle est évidemment trop simpliste.

Le modèle le plus satisfaisant pour le traitement théorique dans ce domaine est, sans doute, celui des capillaires orientés au hasard. Il permet une évaluation mathématique de K beaucoup plus rigoureuse que les traitements semi-empiriques. Les théories correspondant à ce modèle et qui d'ailleurs tiennent compte du rôle de la diffusion moléculaire, sont celles de JOSSELIN DE JONG (49), et celles de SAFFMAN (15), la dernière étant la plus complète et la plus générale. Si l'on porte sur un diagramme logarithmique, les valeurs expérimentales et théoriques de K/D en supposant que $l = d_p$ dans l'expression $\frac{ul}{D}$, on voit que les courbes ont la même forme pour tous les régimes considérés (régimes 1, 2 et 3). Mais on observe qu'il y a un décalage des valeurs expérimentales vers la gauche de la courbe théorique (fig. 15). L'explication est, sans doute, que les conclusions de la théorie ne sont rigoureusement valables que pour un réseau de capillaires orientés au hasard, mais que l'écoulement dans un milieu poreux est beaucoup plus compliqué que dans ce modèle simplifié.

Les autres théories ne permettent pas d'expliquer pourquoi dans le régime d'interférence, l'exposant de l'expression empirique [4.3] est plus grand que 1.

Les théories basées sur les considérations de continuité (ARONOFSKY et HELLER (24) ne peuvent pas en rendre compte parce qu'elles partent de suppositions trop simplistes, qui ne cherchent même pas à expliquer le mécanisme intrinsèque du mélange.

Les théories statistiques assimilant un déplacement miscible à un processus de marche au hasard, soit à intervalles de temps égaux (SCHEIDEGGER (25) (26), soit avec une distribution aléatoire des différents temps de passage à travers les pores (KLINKENBERG (33), ne s'appliquent pas à ce régime non plus, parce qu'une des hypothèses de base est de négliger les effets de la diffusion moléculaire ou de la traiter seulement comme terme additif à la diffusion dynamique (BERAN (30), NIKOLAEVSKIJ (34).

Le modèle des cellules de mélange a été conçu dans sa forme originale avec un mélange parfait à l'échelle de chaque cellule. Il ne parvient donc pas à démontrer l'interférence des deux types de diffusion dans ce régime. En introduisant la notion d'efficacité de mélange, qui diminue lorsque le temps d'action de la diffusion moléculaire décroît, on peut arriver à démontrer qualitativement que K/D ne peut pas être une fonction linéaire de u.

4.2.4. Régime de la diffusion dynamique pure ou régime IV (en restant dans le domaine de validité de la loi de Darcy).

Dans ce régime, les effets et le rôle physique de la diffusion moléculaire deviennent négligeables devant les effets de la diffusion dynamique, qui contribue seule maintenant au mécanisme du mélange. Sur le diagramme sur lequel on porte $\sigma = f(u)$, le régime IV est caractérisé par le palier : $\sigma =$ constante. Sur le diagramme $\frac{K}{D} = f\left(\frac{d_p u}{D}\right)$, il est représenté par une droite de pente égale à l'unité. L'expression mathématique de cette partie est :

$$\frac{K}{D} = \beta\left(\frac{d_p u}{D}\right) \qquad \text{ou} \qquad \beta = 1.8 \pm 0{,}4 \qquad [4.4]$$

Dans les séries I à IV, on a fait varier la granulométrie du milieu poreux tout en laissant la longueur du massif constante. Ceci revient à dire que l'on a fait varier le rapport L/d_p. On a retenu la valeur de l'épaisseur de la zone de transition dans le régime dynamique pur (voir fig. 12 et tabl. V).

TABLEAU V.

SÉRIE	d_p (cm)	n $\left(\frac{L}{d_p}\right)$	σ_{Cte} $\left(\frac{V_{0.46}^{0.50}}{V_p}\right)$
DS I	0,071	1 051	0,0578 ± 0,005
DS II	0,0355	2 100	0,0372 ± 0,0017
DS III	0,21	357	0,0969 ± 0,007
DS IV	0,0447	1 670	0,0523 ± 0,005

L'expérience montre que la zone de transition croît lorsque le diamètre des particules d_p augmente (L restant constant).

L'expression de l'épaisseur relative σ de la zone de transition est :

$$\sigma = \gamma \sqrt{\frac{2K}{L \cdot u}} \qquad [4.5]$$

où γ est une constante, qui dépend des valeurs de la concentration entre lesquelles on a mesuré l'épaisseur de la zone.

Avec :

$$\sigma = \underbrace{\gamma (2\beta)^{1/2}}_{C^{te}} \sqrt{\frac{u \cdot d_p}{u \cdot L}} \qquad [4.6]$$

$$\sigma = f\left(\frac{d_p}{L}\right)^{1/2} = f\left(\frac{1}{n}\right)^{1/2} \qquad [4.7]$$

ici n est le nombre de pores ou également le nombre d'interconnexions dans la direction de l'écoulement.

Ce n'est donc pas simplement la racine carrée de la distance parcourue, comme il est dit généralement, qui détermine l'épaisseur de la zone de transition, mais plutôt la racine carrée du rapport d_p/L ou l'inverse du nombre $1/n$ de pores traversés. Sur la représentation logarithmique de σ en fonction de n (fig. 18), on voit nettement que les résultats pour les séries I, II et III sont bien sur une droite de pente $-1/2$, ce qui veut dire que β est indépendant de L/d_p.

Les expériences de TAYLOR (19) (20) sur le déplacement de deux fluides dans un capillaire ont servi de point de départ pour le raisonnement qui a abouti à faire les séries de déplacements à grandes vitesses. On se rappelle que TAYLOR a distingué deux régimes d'écoulement dans un capillaire. Dans le premier (u_m petit), le mélange entre les deux fluides miscibles est décrit par l'équation de la diffusion où le coefficient de diffusion apparente dans un capillaire K_c est lié à la vitesse moyenne u_m, au rayon du capillaire a, et au coefficient de la diffusion moléculaire D, de la façon suivante :

$$K_c = \frac{1}{48} \frac{(u_m \cdot a)^2}{D} \qquad [2.16]$$

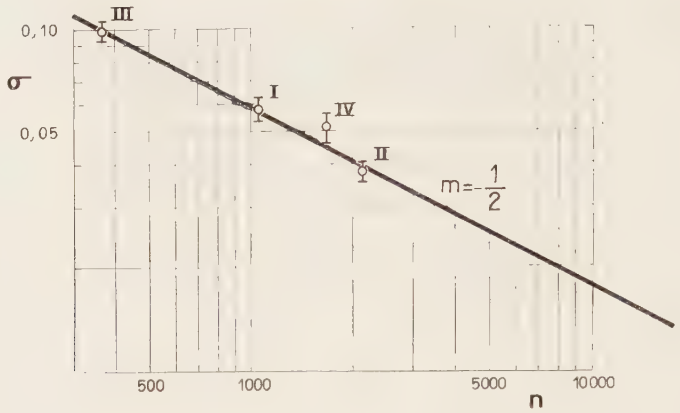


FIG. 18. — Largeur de la zone de transition σ en fonction du nombre d'interconnexions n.

Dans le deuxième régime (u_m très grand), la diffusion moléculaire peut être négligée et la concentration moyenne dans la zone de transition peut être calculée à l'aide du profil de la distribution des vitesses dans un capillaire :

$$u = 2u_m \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right) \qquad [4.8]$$

La concentration moyenne dans une section d'abscisse x sera donnée par :

$$C_m = \frac{2}{a^2} \int_0^a C_r \, dr \qquad [4.9]$$

Lorsqu'on impose à l'entrée une variation en échelon de C, on aura :

$$C_m = C_0 \left(1 - \frac{x}{2u_m t}\right) \qquad \left(0 < t < \frac{x}{2u_m}\right) \qquad [4.10]$$

Cette concentration ne peut évidemment plus obéir à l'équation de la diffusion (on ne peut donc plus parler d'un coefficient de dispersion K_c), la diffusion moléculaire n'intervient plus. Si la concentration de l'effluent est égale à la concentration moyenne dans la section de sortie, la courbe de concentration en fonction du volume injecté ne dépendra plus de la vitesse moyenne.

En transposant qualitativement les résultats de TAYLOR à un pore, un des buts des expériences à grande vitesse était de voir s'il existe plusieurs régimes de mélange dans un milieu poreux et si possible de les mettre en évidence. A cette fin, il fallait augmenter les vitesses de déplacement de telle façon que le temps de séjour des deux fluides dans le milieu devienne si court que les effets de la diffusion moléculaire puissent être considérés comme négligeables par rapport aux effets de la dispersion mécanique dans le système.

A l'échelle d'un pore, ce régime est atteint quand la diffusion moléculaire n'intervient plus, c'est-à-dire, lorsque le temps de passage t d'une particule fluide à travers un pore est petit par rapport au temps t_1 nécessaire à la diffusion moléculaire pour intervenir d'une façon appréciable. La zone de mélange individuelle du pore, ou plutôt le volume sur lequel on peut constater une variation de C, reste constant et indépendant de la vitesse de déplacement.

Pour l'ensemble du milieu poreux, il est donc facile de concevoir que l'épaisseur de la zone de transition globale ne sera plus une fonction de u. Sa forme et son épaisseur sont maintenant déterminées seulement par la configuration du réseau des lignes de courant. Dans le domaine où la loi

de Darcy est valable, cette configuration reste stable et ne varie pas avec la vitesse moyenne, parce que les termes d'inertie dans les équations de Navier restent négligeables. Les rapports mutuels des différentes vitesses locales restent donc constants dans ce régime, ainsi que la dispersion relative de ces vitesses autour de la vitesse moyenne. Le traitement mathématique dépend maintenant des propriétés statistiques et géométriques que l'on veut donner au modèle théorique en considération.

Dans le quatrième régime, toutes les théories purement statistiques s'appliquent donc, parce qu'une de leurs hypothèses de base est de ne pas considérer la diffusion moléculaire. Ces théories prédisent une variation linéaire de K en fonction de u, mais ne donnent pas le facteur de proportionnalité.

On peut essayer de comparer la vitesse critique u_c pour laquelle on a un changement brusque de pente des courbes expérimentales à une vitesse caractéristique u_1 pour laquelle le temps de passage $t = l/u_1$ d'une particule dans un capillaire et le temps t_1 pendant lequel apparaîtraient des effets appréciables de la diffusion moléculaire à travers la section du pore sont égaux.

SAFFMAN a choisi comme valeur de t_1 :

$$t_1 = a^2/8D \qquad [4.11]$$

On a alors :

$$u_1 = \frac{8D}{a^2} \qquad [4.12]$$

En faisant les mêmes hypothèses que SAFFMAN :

$$l = d_p \qquad a = d_p/5$$

on aura :

$$u_1 = 200\,D/d_p$$

qui correspond à un nombre de Péclet de diffusion :

$$(Pe_D)_1 = 200$$

Sur le tableau VI, on a porté les valeurs expérimentales des nombres de Péclet critiques correspondant aux séries I à IV, déterminés à l'aide des droites sur la figure 14.

TABLEAU VI.

SÉRIE	d_p (cm)	$a = \frac{1}{5} d_p$ (cm)	$u_1 = 8 \frac{d_p \cdot D}{a^2}$ (cm/s^{-1})	Pe_D (exp.) $\frac{d_p u_{cr}}{D}$ —
I	0,071	0,0142	0,0417	600
II	0,0355	0,0071	0,0836	200
III	0,21	0,042	0,01415	600
IV	0,0447	0,00894	0,0614	130

On remarquera que le nombre de Péclet critique est environ égal à 200 pour les granulométries les plus fines et qu'il est plus important lorsque d_p augmente.

En fin de compte, le modèle qui se rapproche le plus de la réalité du milieu poreux pendant un déplacement miscible est donc celui de SAFFMAN (14) (15).

L'utilité de comparer les résultats expérimentaux avec les prévisions des différentes théories faites sur divers modèles de milieux poreux est la suivante :

Le déplacement miscible idéal étant le cas le plus simple d'un écoulement de deux fluides en milieu poreux, le modèle qui convient le mieux à son traitement mathématique et qui montre la meilleure concordance avec les résultats expérimentaux obtenus peut être susceptible de servir comme modèle de base pour les théories concernant des phénomènes d'écoulement plus difficiles, comme par exemple l'écoulement diphasique.

4.2.5. Régime de la diffusion dynamique pure ou régime V (effets d'inertie non négligeables).

Bien que cette étude expérimentale n'atteint pas ce régime, il faut en parler ici pour donner un aperçu complet des phénomènes de diffusion dans le milieu poreux.

L'interprétation des valeurs expérimentales de K/D obtenues pour de très grands nombres de Péclet par deux auteurs (9) (37), montrent qu'il y a un changement de régime lorsque Pe est égal environ à 150 000. On peut l'expliquer en disant que les lignes de courant se modifient lorsque les effets d'inertie doivent être pris en compte.

Ceci est bien connu dans le cas de la sphère isolée, ou le réseau des lignes de courant est symétrique dans le régime de STOKES et devient dissymétrique dans le régime d'OSEEN, où les termes d'inertie sont retenus.

Lorsque l'on change de couple de fluides, le nombre de Péclet critique devra changer, car la fin du régime de Darcy dans les milieux poreux correspond à un nombre de Reynolds critique indépendant de la nature des fluides (à condition que $\mu_1 = \mu_2$), et qui change avec la nature du milieu poreux.

$$Pe_c = (Re_c) \times \frac{\mu}{D\rho} \qquad [4.13]$$

A partir du nombre de Péclet critique déterminé par la forme ci-dessus, il y a donc de nouveau une influence de la vitesse moyenne sur l'épaisseur relative de la zone de transition σ.

4.3. Caractérisation du milieu poreux.

4.3.1. Méthodes statiques.

Nous savons que l'on peut caractériser les propriétés morphologiques d'un milieu poreux par une méthode statique, à savoir par le rapport entre la résistivité de la roche entièrement saturée ρ_0, d'un fluide conducteur et la résistivité de ce fluide en milieu continu ρ_w. Ce rapport est le facteur de formation F :

$$F = \frac{\rho_0}{\rho_w} \qquad [4.14]$$

Une relation analogue existe pour le rapport entre le coefficient de la diffusion moléculaire K dans un milieu poreux, coefficient défini dans l'espace et le coefficient de la diffusion moléculaire du même fluide en milieu continu :

$$F' = \frac{D}{K_f} \qquad [4.15]$$

Pour mieux exprimer l'analogie physique entre les phénomènes de la diffusion et la conductibilité

électrique il est préférable d'utiliser le rapport J de la conductivité apparente σ_0 et la conductivité du fluide en milieu continu σ_w (CARMAN (50) :

$$J = \frac{\sigma_0}{\sigma_w} = \frac{1}{F} = \frac{K_f}{D} \qquad [4.16]$$

Le coefficient de diffusion K dans le fluide contenu dans le milieu poreux est relié au coefficient K_f défini dans l'espace par la relation :

$$K = K_f \cdot f$$

On a donc :

$$\frac{J}{f} = \frac{\sigma_0}{\sigma_w \cdot f} = \frac{K}{D}$$

Nous avons trouvé expérimentalement que le coefficient K/D est environ égal à 0,67 pour des milieux poreux constitués par des billes de verre ou des sables non consolidés. Ceci concorde bien avec les valeurs données par CARMAN (50) pour des sables non consolidés.

CARMAN a donné également les valeurs de ce coefficient pour d'autres milieux poreux. Il varie entre 0,878 et 0,346.

Ce coefficient, dont l'inverse est parfois appelé tortuosité, peut donc servir à caractériser le milieu poreux.

4.3.2. Méthodes dynamiques.

Avec les résultats que l'on a obtenu dans l'étude de la diffusion dynamique on peut essayer de trouver un autre moyen de caractériser les milieux poreux.

Partons des expressions empiriques :

$$\frac{K}{D} = \alpha \left(\frac{d_p u}{D}\right)^m \qquad (3^e \text{ régime}) \qquad [4.3]$$

et :

$$\frac{K}{D} = \beta \left(\frac{d_p u}{D}\right) \qquad (4^e \text{ régime}) \qquad [4.4]$$

On peut penser que la morphologie des pores et la géométrie intrinsèque de l'interconnexion du milieu poreux influent sur ces deux coefficients α et β.

Pour les expériences de la présente étude, leurs valeurs sont données dans le tableau VII :

TABLEAU VII.

SÉRIE	d_p (cm)	3e RÉGIME		4e régime
		m	α	β
DPX	Sable 0,072	1,2	0,235	—
O	Sable 0,071	1,2	0,476	—
I	Sable 0,071	1,2	0,51	1,9
II	Sable 0,0355	1,2	0,5	1,45
III	B verre 0,21	1,6	0,014	1,75
IV	B verre 0,0447	1,2	0,85	2,22

Les résultats expérimentaux ne mettent pas en évidence que α soit une fonction décroissante de d_p comme l'ont prétendu BLACKWELL (6) et BRIGHAM, REED et DEW (17), en s'appuyant sur trop peu d'expériences et sans introduire d'explication théorique.

Les coefficients sans dimensions α et β peuvent donc servir pour caractériser la dispersivité d'un milieu poreux dans les régimes III et IV. Cette dispersivité dépend uniquement des propriétés géométriques du milieu poreux, lorsque l'exposant $m = 1$ (4e régime).

Ces coefficients peuvent être interprétés physiquement comme un rapport de longueurs, ce qui peut être exprimé en disant que la longueur de mélange (longueur l des capillaires constituant le régime de capillaires équivalent au milieu poreux) n'est plus égale au diamètre des particules. Cette longueur reste toutefois proportionnelle à ce diamètre et le facteur de proportionnalité dépend de la morphologie du milieu poreux.

A l'aide de ce raisonnement, on voit qu'une caractérisation du milieu poreux est possible à l'aide de mesures de la diffusion dynamique.

Dans le cas d'un empilement de sphères ou de sable non consolidé, par exemple, α prend une valeur égale à environ 0,5. Des expériences sur des carottes taillées dans du grès ont montré que le coefficient α d'un milieu consolidé peut être jusqu'à cent fois plus grand que celui d'un milieu non consolidé (17). α peut donc servir comme mesure de l'efficacité du mélange dans le milieu poreux ou comme une mesure de l'interconnectivité entre les canaux de l'écoulement.

Un travail intéressant à faire serait d'établir un catalogue de valeurs de α pour différentes roches et de faire la comparaison avec leurs autres caractéristiques globales comme la perméabilité, la porosité, etc.

Pour les études de modèles, ces facteurs α et β auront sans doute une certaine importance, les dispersivités du prototype et du modèle réduit doivent être égales, si l'on a le même nombre de Péclet de diffusion.

5. CONCLUSION

La présente étude a eu pour but de mettre en évidence l'influence de certains paramètres pendant le déplacement de deux fluides miscibles dans un milieu poreux. Les deux paramètres sur lesquels on a trouvé la plus grande divergence d'opinions dans la bibliographie ont été étudiés, à savoir la diffusion moléculaire et la longueur caractéristique élémentaire.

La revue bibliographique a montré que de nombreuses controverses pourraient provenir d'une différence de conditions expérimentales. Un soin particulier a donc été pris pour mettre au point un mode opératoire permettant d'assurer les conditions idéales ($\mu_1/\mu_2 = 1$, $\rho_1 = \rho_2$), d'éviter des effets parasites et de garantir une reproductibilité aisée.

Une grande partie du travail consistait à rassembler la littérature sur ce sujet provenant des différents domaines de la science et de la technique et à vérifier les méthodes expérimentales et les résultats antérieurs.

Les résultats exposés dans le présent travail sont les suivants :

Le rôle physique de la diffusion moléculaire et l'importance du rapport $\frac{L}{d_p}$ (au lieu de la distance L seulement) pour la formation de la zone de mélange ont été déterminés expérimentalement.

Quatre régimes différents de mélange au cours d'un déplacement miscible ont été mis en évidence par les résultats expérimentaux. La plupart des déplacements ont été faits afin d'établir, pour des vitesses de déplacement élevées, la distinction entre le régime interférentiel (III) et le régime de diffusion dynamique pure (IV). Cette distinction n'avait pas été faite expérimentalement jusqu'ici, parce que les autres auteurs se bornaient à étudier des domaines limités sans explorer toute la gamme des nombres de Péclet.

La comparaison avec les différentes théories montre que le modèle du réseau de capillaires interconnectés et répartis au hasard, proposé par SAFFMAN, permet le mieux d'expliquer les phénomènes de diffusion dynamique dans le milieu poreux.

La différence entre les valeurs expérimentales et les valeurs théoriques de SAFFMAN peut s'interpréter en considérant que la longueur de mélange est plus grande que le diamètre moyen des particules.

En conclusion, nous avons proposé une méthode de caractérisation dynamique d'un milieu poreux basé sur ces considérations.

BIBLIOGRAPHIE

(1) HALL (H. N.) et GEFFEN (T. M.). — A Laboratory Study of Solvent Flooding. *Trans. A. I. M. E.*, 1957, **210**, T. P. 4456, p. 48.

(2) LACEY (J. W.), DRAPER (A. L.) et BINDER (G. G.). — Miscible Fluid Displacement in Porous Media. *Trans. A. I. M. E.*, 1958, **213**, p. 76.

(3) KOCH (H. A. Jr) et SLOBOD (R. L.). — Miscible Slug Process. *Petr. Trans. A. I. M. E.*, 1957, **210**, T. P. 4458, p. 40.

(4) SIEVERT (J. A.), DEW (J. N.) et CONLEY (F. R.). — The Deterioration of Miscible Zones as Applied to Recovery Processes. Paper 904-6, *32nd Annual Fall Meeting Society Petroleum Engineers*, Dallas, Texas, oct. 6-9, 1957.

(5) BLACKWELL (R. J.). — Experiments on Mixing by Fluid flow in Porous Media. *A. I. Ch. E.-S. P. E., 52nd Annual Meeting San Francisco* (dec. 6-9, 1959. Preprint nº 29.

(6) BLACKWELL (R. J.), RAYNE (J. R.) et TERRY (W. M.). — Factors influencing the Efficiency of Miscible Displacement. *Trans. A. I. M. E* 1959, **217**, p. 1-8.

(7) RAIMONDI (P.), GARDNER (G. H. F.) et PETRICK (C. B.). — Effect of Pore Structure and Molecular Diffusion on the Mixing of Miscible Liquids Flowing in Porous Media. *A. I. Ch. E., 52nd Annual Meeting San Francisco*, dec. 6-9, 1959. Preprint.

(8) ORLOB (G. T.) et RADHAKRISHNA (G. N.). — The Effects of Entrapped Gases on the Hydraulic Characteristics of Porous Media. *Trans. Am. Geo. Union*, 1959, **39**, p. 648.

(9) EBACH (E. A.) et WHITE (R. R.). — Mixing of Fluids Flowing through Beds of Packed Solids. *A. I. Ch. E.*, 1958, **4**, nº 2, p. 161-164.

(10) HENDERSON (J. H.), GOVE (N. B.), LEDBETTER (H. J.) et GRIFFITH (J. D.). — A Laboratory Investigation of Oil Displacement from Porous Media by a Liquefied Petroleum Gas. *Trans. A. I. M. E.*, 1953, **198**, p. 48.

(11) OFFERINGA (C.) et VAN DER POEL (C.). — Displacement of Oil from Porous Media by Miscible Liquids. *Trans. A. I. M. E.*, 1954, **201**, p. 310.

(12) EVERETT (J. P.), GOOCH (F. W. Jr) et CALHOUN (J. C. Jr). — Liquid-liquid Displacement in Porous Media as Affected by the Liquid-liquid Viscosity Ratio and Liquid-liquid Miscibility. *Trans. A. I. M. E.*, 1950, **189**, p. 215.

(13) HANDY (L. L.). — An Evaluation of Diffusion Effects in Miscible Liquid Displacement. *Journ. Petrol. Tech.*, 1959, **11**, 3, p. 61.

(14) SAFFMAN (P. G.). — A Theory of Dispersion in a Porous Medium. *J. Fluid Mech.*, oct. 1959, **6**, Part 3, p. 321-349.

(15) SAFFMAN (P. G.). — Dispersion due to Molecular Diffusion and Macroscopic Mixing in Flow through a Network of Capillaries. *J. Fluid Mech.*, 1960, G. B., **7**, nº 2, p. 194-208.

(16) SLOBOD (R. L.), BURCIK (E. J.) et CASHDOLLAR (B. H.). — The Effect of Viscosity Ratio and Path Length in Miscible Displacement in Porous Media. *Producers Monthly*, june 1959, p. 11.

(17) BRIGHAM (W. E.), REED (P. W.) et DEW (J. N.). — Experiments on Mixing by Fluid Flow in Porous Media. *A. I. Ch. E.-A. I. M. E., Symposium on Oil Recovery Methods*, San Francisco, 1959. Preprint 44.

(18) VON ROSENBERG (D. U.). — Mechanics of Steady State Single Phase Fluid Displacement from Porous Media. *A. I. Ch. E. Journal*, march 1956, **2**, nº 1, p. 55.

(19) Sir GEOFFREY TAYLOR (F. R. S.). — Dispersion on Soluble Matter in Solvent Flowing Slowly trough a Tube. *Proceeding Royal Society of London*, august 1953, serie A, **219**, nº 1137, p. 186-203.

(20) Sir GEOFFREY TAYLOR (F. R. S.). — Conditions under which Dispersion of a Solute in a Stream of Solvent can be used to Measure Molecular Diffusion. *Proceedings Royal Society of London*, sept. 1954, serie A, **225**, nº 1163, p. 473-477.

(21) ARIS (R.). — On the Dispersion of a Solute in a Fluid Flowing through a Tube. *Proc. Royal Soc. A.*, 1956, **235**, p. 67.

(22) KLINKENBERG (L. J.). — Pore Size Distribution of Porous Media and Displacement

Experiments with Miscible Liquids. *J. Petr. Techn.*, apr. 1957, p. 63-66.

(23) MARLE (C.) et DEFFRENNE (P.). — La description mathématique du déplacement de fluides miscibles dans un milieu poreux. Rapport I. F. P., réf. 5433, juil. 1960.

(24) ARONOFSKY (J. S.) et HELLER (J. P.). — A Diffusion Model to Explain Mixing of Flowing Miscible Fluids in Porous Media. *Trans. A. I. M. E.*, 1957, **210**, p. 345.

(25) SCHEIDEGGER (A.). — Statistical Hydrodynamics in Porous Media. *Jour. Appl. Phys.*, 1954, **25**, p. 994.

(26) SCHEIDEGGER (A. E.). — Statistical Approach to Miscible Displacement in Porous Media. *Bul. Canad. Inst. Min. Metal.*, janv. 1958, p. 26-30.

(27) SCHEIDEGGER (A. E.). — Flow through Porous Media. *Appl. Mech. Rev.*, 1960, **13**, n° 5, p. 313-317.

(28) SCHEIDEGGER (A. E.). — Typical Solutions of the Differential Equations of Statistical Theories of flow through Porous Media. *Trans. Amer. Geophys. Un.*, 1958, **39**, n° 5, p. 929-932.

(29) SCHEIDEGGER (A. E.). — The Random walk Model with Autocorrelation of flow through Porous Media. *Canad. J. Physics*, 1958, **36**, p. 649-658.

(30) BERAN (M. J.). — Dispersion in Soluble Matter in flow through Granular Media. *The Journal of Chemical Physics*, july 1957, **27**, n° 1, p. 270-274.

(31) RIFAÏ (N. E.), KAUFMAN (W. J.) et TODD (D. K.). — Dispersion Phenomena in Laminar flow through Porous Media. Sanitary Engineering, report n° 3, I. E. R., séries 90, *Berkley*, Cal., july 1, 1956.

(32) DAY (P. R.). — Dispersion of a Moving Salt-Water Boundary advancing through a Saturated Sand. *Trans. Amer. Geophys. Un.*, 1956, **37**, p. 595.

(33) KLINKENBERG (A.) et SJENITZER (T.). — Holding Time Distribution of the Gaussian Type. *Chem. Eng. Sci.*, 1956, **5**, p. 258.

(34 *a*) NIKOLAEVSKIJ (V. N.). — Modèle capillaire de diffusion dans les milieux poreux. *Izv. Akad. Nauk. S. S. S. R.*, Otdel. Tekh. Nauk, Mekh. I Mas, Moskva, 1954, n° 4, p. 146-149.

(34 *b*) NIKOLAEVSKIJ (V. N.). — Diffusion par convection dans les milieux poreux. *Priklad. Mat. I. Mekh. Moskva*, 1959, **23**, Vyp. 6, p. 1043-1050. Trad. I. F. P.

(35) BEAR (J.). — On the Tensor form of Dispersion in Porous Media. *Journal of Geophysical Research*, april 1961, **66**, n° 4, p. 1185-1197.

(36) BEETON (A. B. P.). — Cité dans réf. 52, *Brit. Natl. Gas Turbine Establ.* Report. R 152, 1954.

(37) CARBERRY (J. J.) et BRETTON (R. H.). — Axial Dispersion of Mass in Flow through fixed Beds. *A. I. Ch. E. Jour.*, sept. 1958, **4**, n° 3, p. 367-375.

(38) SCHWARTZ (C. E.) et SMITH (J. M.). — Flow Distribution in Packed Beds. *Industrial and Engineering Chemistry*, june 1953, **45**, n° 6, p. 1209-1218.

(39) KAUFMANN (W. J.) et ORLOB (G. T.). — An Evaluation of Ground-water Tracers. *Trans. Amer. Geophys. Union*, 1956, **37**, p. 297-306.

(40) STOKES (R. H.). — The Diffusion Coefficients of Eight Uni-univalent Electrolytes. *Journal of the American Chemical Society*, may 1950, **72**, p. 2247.

(41) MYSELS (K. J.) et STIGLER (D.) A new Method of Measuring Diffusion Coefficients. *Journal of Physical Chemistry*, janv. 1953, **57**, p. 104-106.

(42) VINOGRAD (J. R.) et MC BAIN (J. W.). — Diffusion of Electrolytes and of the Ions in their Mixtures. *Am. Chem. Soc. Journ.*, 1941, **63**, p. 2008-2015.

(43) GARRELS (R. M.), DREYER (R. M.) et HOWLAND (A. L.). — Diffusion of Ions through intergranular Spaces in Water-saturated Rocks. *Bulletin of the Geological Society of America*, dec. 1949, **60**, p. 1809-1828.

(44) DANCKWERTS (P. V.). — Continuous flow Systems. Distribution of Residence Times. *Chem. Eng. Sci.*, 1953, **2**, 1, p. 1.

(45) MARLE (C.). — Étude expérimentale du déplacement miscible stable. Rapport I. F. P., réf. 5900, déc. 1960.

(46) KLINKENBERG (L. J.). — Analogy between Diffusion and Electrical Conductivity in Porous Rocks. *Bull. Geol. Soc. Am.*, june 1961, **62**, p. 559-564.

(47) PENMAN (H. L.). — *J. Agric. Sci.*, 1940, **30**, p. 437-570.

(48) LE FUR (B.). — Considérations sur la théorie statistique des milieux poreux. Rapport I. F. P., réf. 6551, juil. 1961.

(49) DE JOSSELIN DE JONG (G.). — Longitudinal and Transverse Diffusion in Granular Deposits. *Trans. Am. Geophys. Union*, feb. 1958, **39**, 1, p. 67.

(50) CARMAN (P. C.). — Flow of Gases through Porous Media, p. 46-48, London, 1956.

(51) ARIS (R.) et AMUNDSON (N. R.). — Some Remarks on Longitudinal Mixing or Diffusion in fixed Beds. *A. I. Ch. E. Journ.*, 1957, **3**, p. 280.

(52) GORDON (A. R.). — *J. Chem. Phys.*, 1937, **5**, p. 522.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

LES PHÉNOMÈNES ÉLECTROCINÉTIQUES DANS LES MILIEUX POREUX

Vu et approuvé :

Paris, le 29 avril 1962

Le Doyen
de la Faculté des Sciences,

Marc ZAMANSKY

Vu et permis d'imprimer :

Le Recteur de l'Académie
de Paris,

Jean ROCHE